

Atomare und molekulare Fragmentationsdynamik in intensiven ultrakurzen Lichtpulsen

von
Christoph Ernst Trump
aus Würzburg



Vom Fachbereich 4 (Physik)
der Technischen Universität Berlin
zur Verleihung des akademischen Grades
Doktor der Naturwissenschaft
genehmigte Dissertation

Berlin 2000
D 83



Promotionsausschuß:

Vorsitzender:

Prof. Dr. P. Zimmermann

Berichter:

Prof. Dr. Sandner

Prof. Dr. von Oppen

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 22.05.2000

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Motivation	1
2. Grundlagen	4
2.1. Bewegung eines freien Elektrons im elektromagnetischen Strahlungsfeld	4
2.1.1. Ponderomotorisches Potential	6
2.2. Photoionisationsmechanismen (Einfache Ionisation)	9
2.2.1. Multiphotonenionisation ($\gamma > 1$)	9
2.2.2. Elektrische Feldionisation (Tunnelionisation) $\gamma < 1$	11
2.3. Mehrfache Ionisation (Nichtsequentielle Ionisation)	13
2.4. Dissoziationsmechanismen	20
2.4.1. H_2/D_2 in intensiven Lichtfeldern	20
2.4.2. Dissoziation durch Bindungsaufweichung	23
2.4.3. Coulomb-Explosion	25
3. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von H_2/D_2	28
3.1. Düsenstrahlkammer	28
3.2. Differentielle Pumpstufe	31
3.3. Wechselwirkungskammer	32
3.4. Modifikationen an der Kammer	33
3.5. Energieauflösung	34
3.6. Lasersysteme	38
3.6.1. Titan-Saphir Lasersystem I	38
3.6.2. Titan-Saphir Lasersystem II	41
4. Ionisations- und Dissoziationsdynamik von H_2/D_2 in intensiven Lichtfeldern	43
4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen	43
4.1.1. Floquet 2-Photonen Dissoziationskanal	44
4.1.2. Ionisation des Vibrationsgrundzustandes von H_2^+ und D_2^+	50
4.1.3. Ausrichtung von Molekülen in intensiven Lichtfeldern	55
4.1.4. Polarisationsabhängigkeit	58
4.2. Pump-Probe Untersuchungen	65
4.2.1. Pump-Probe Untersuchungen mit 80 fs Laserpulsen	65

4.2.2. Hochauflösende Pump-Probe Untersuchungen	72
4.2.3. Abbildung der molekularen Kernwellenfunktion	73
5. Ionisationsdynamik von Atomen in intensiven Lichtfeldern	79
5.1. Einführung in das Prinzip der COLTRIMS	79
5.2. Experimenteller Aufbau	83
5.3. Experimentelle Ergebnisse für zirkular polarisiertes Licht	85
5.4. Experimentelle Ergebnisse für linear polarisiertes Licht	87
5.4.1. Impulsverteilung von Ne^+	88
5.4.2. Verteilung der Impulse von Ne^{2+} und Ne^{3+} im nichtsequentiellen Bereich	92
5.4.3. Verteilung der Impulse von Ne^{2+} im sequentiellen Bereich	97
5.5. Zusammenfassung	99
6. Zusammenfassung und Ausblick	101
A. Quantenmechanische Behandlung von H_2^+ in intensiven Lichtfeldern	104
B. Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit	111
C. Lebenslauf	112
D. Danksagung	113

Abbildungsverzeichnis

2.1. Ionisationsmechanismen im Photonenbild	9
2.2. Prinzip der elektrischen Feldionisation	12
2.3. Ionenausbeute von $\text{He}^+/\text{He}^{2+}$ in Abhängigkeit von der Lichtintensität nach [1]	14
2.4. Schematische Darstellung des „Rescattering“ Prozesses	16
2.5. Zerfallskanäle nach der Multiphotonenanregung von H_2	21
2.6. Darstellung einiger ausgewählter Potentialkurven von H_2 und H_2^+ nach [2]	22
2.7. Schematische Darstellung der resonanten 1-Photonen Kopplung zwischen dem $1s\sigma_g$ Zustand und dem $2p\sigma_u$ Zustand	23
2.8. Schematische Darstellung der Potentialkurven des $1s\sigma_g$ - und $2p\sigma_u$ Zustandes in einem intensiven Lichtfeld	24
2.9. Wechselwirkungspotential, das aus dem Coloumb-Feld der beiden Kerne und einem statischen elektrischen Feld gebildet wird für verschiedene Kernabstände	26
3.1. Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur Untersuchung von H_2/D_2	29
3.2. Zeitlicher Verlauf des elektronischen Ansteuerpulses an der Piezodüse	30
3.3. Besetzung der Rotationszustände im Molekularstrahl nach [3]	31
3.4. Ionenausbeute am Wechselwirkungsort in Abhängigkeit vom Vordruck P_0 der Düse	32
3.5. Berechnete Wahrscheinlichkeitsverteilung für die gemessenen Energien	35
3.6. Thermische Verbreiterung eines Modellspektrums	36
3.7. Verteilung der kinetischen Energie der H^+ Ionen aus einem thermischen Gas und einem Molekularstrahl	36
3.8. Öffnungswinkel in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Ionen	37
3.9. Verteilung der kinetischen Energie der H^+ Ionen mit und ohne Öffnungswinkelkorrektur	37
3.10. Schematische Darstellung des Lasersystems I	39
3.11. Autokorrelationskurve des zeitlichen Profils der Intensitätsverteilung des Laserpulses (Lasersystem I)	40

3.12. Schnitt durch die Intensitätsverteilung in der Fokusebene des Laserpulses (Lasersystem I)	40
3.13. Interferometrische Autokorrelationskurve des zeitlichen Profils der Intensitätsverteilung des Laserpulses (Lasersystem II)	41
4.1. Verteilung der kinetischen Energie der H^+ (oben) und D^+ für verschiedene Pulsdauern	44
4.2. Verteilung der kinetischen Energien von H^+/D^+ für verschiedene Lichtintensitäten	45
4.3. Vergleich zwischen der Verteilung der kinetischen Energien von H^+ und einer Franck-Condon Verteilung	47
4.4. Verteilung der kinetischen Energie der Elektronen aus der Anregung von H_2 mit intensiven Lichtpulsen	49
4.5. Verteilung der kinetischen Energien von H^+ und D^+ für sehr intensive Lichtpulse	51
4.6. Verteilung der kinetischen Energien von H^+ und D^+ mit einer kinetischen Energie im Bereich von 3 eV bis 10 eV	52
4.7. Ionenausbeute in Abhängigkeit des Kernabstandes	54
4.8. Ionisationspotential und Ionisationswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit vom Kernabstand	55
4.9. Schematische Darstellung der Versuchsanordnung	57
4.10. Normierte Winkelverteilung der H^+/D^+ Ionen aus dem Zerfallskanal $H_2/D_2 \rightarrow H^+/D^+ + H^+/D^+$	58
4.11. Normierte Winkelverteilung der D^+ Ionen aus dem Zerfallskanal $D_2 \rightarrow D^+ + D^+$ (Coulomb-Explosion) und dem Zerfallskanal $D_2 \rightarrow D + D^+$ (Floquet 2-Photonen Kanal)	59
4.12. Verteilung der kinetischen Energie von H^+ Photoionen in Abhängigkeit von der Elliptizität ξ des Lichtes	60
4.13. Integrierte Ionenausbeute in den verschiedenen Dissoziationskanälen in Abhängigkeit von der Elliptizität ξ des Lichtes	61
4.14. Winkel zwischen den zwei Koordinatensystemen (xy) und ($x'y'$)	62
4.15. Ausrichtung des Dipols im elektrischen Feld einer Lichtwelle für verschiedene Anfangswinkel	64
4.16. Verteilung der kinetischen Energie der D^+ Ionen nach der Wechselwirkung mit zwei zeitlich zu einander verzögerten Laserpulsen	66
4.17. Schematische Darstellung des zeitlichen Verlaufs im Potentialbild	69
4.18. Berechnete Verteilung der Kernabstände und der kinetischen Energie für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls	71
4.19. Verteilung der kinetischen Energie für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls	73

4.20. Verteilung der kinetischen Energie nach der Wechselwirkung mit Pump- und Probepuls, mit dem Pumpimpuls bzw. nur mit dem Probepuls	74
4.21. Prinzip des Mechanismus zur Abbildung der Kernwellenfunktion	75
4.22. Berechnete Ionisationswahrscheinlichkeit von D in Abhängigkeit von der Zeit	76
4.23. Vergleich der berechneten Verteilung der kinetischen Energien der Gaußschen Wellepaket für verschiedene Propagationszeiten mit den gemessenen Daten	78
5.1. Schematische Darstellung des Impulses eines Ions und zweier Elektronen	80
5.2. Funktionsweise der COLTRIMS Methode	81
5.3. Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus	83
5.4. Aufbau des ortsauflösenden Detektors	85
5.5. Darstellung der angelegten Spannungen	86
5.6. Impulsverteilung der Ne^+ für zirkulare Polarisation des Lichtes	87
5.7. Berechnete Ionenausbeute von Ne^+ , Ne^{2+} und Ne^{3+} in Abhängigkeit von der Lichtintensität nach [4] und [5]	89
5.8. Impulsverteilung von $\text{Ne}^{(1-3)+}$ in der Ebene parallel und senkrecht zur Polarisationsachse des Lichtes	90
5.9. Impulsverteilung von Ne^+ parallel (\parallel) und senkrecht (\perp) zur Polarisationsachse des Lichtes	91
5.10. Verteilungen der Impulse von Ne^{2+} und Ne^{3+} parallel und senkrecht zur Polarisationsachse des Lichtes	92
5.11. Abhängigkeit der Rückkehr des Elektrons von der Startphase. Graphische Lösung der Rückkehrbedingung. Zeitpunkt der Phase für die Rückkehr ωt_R . Kinetische Energie des Elektrons bei der Rückkehr	95
5.12. Mögliche Impulse unter Berücksichtigung der kinetischen Randbedingungen	97
5.13. Verteilungen der Impulse von Ne^{2+} parallel (x-Richtung) und senkrecht (y-Richtung) zur Polarisationsachse des Lichtes	98
A.1. Mit dem Floquet-Ansatz berechneten adiabatische Potentiale in einem Lichtfeld der Wellenlänge $\lambda = 790 \text{ nm}$ für verschieden Lichtintensitäten .	109

Tabellenverzeichnis

3.1. Zusammenfassung der Laserparameter des Lasersystems I und II	42
4.1. Franck-Condon-Faktoren ($H_2^1\Sigma_g^+, v = 0, K = 0 \rightarrow H_2^+(^2\Sigma_g^+, v', K' = 0)$. .	46
4.2. Zusammenstellung der Linienbreite für verschiedene Isotope und Pulsdauern	48
4.3. Verhältnis der Ionenausbeuten im Schulter- und CREI-Bereich ($E_{kin} = (3 - 10) \text{ eV}$) (näheres siehe Text)	53
5.1. Zusammenfassung der Intensitäten für die gemessenen Impulsverteilungen der Ne^{n+} Ionen.	88
5.2. Ionisationspotential I_p von Ne^{n+} nach [6]	96

1. Einleitung und Motivation

„Was wäre ein Fußballspiel im Fernsehen ohne Zeitlupe, die im Nachhinein die Bewegung der Spieler und des Balls nachvollzieht, wenn ein Tor gefallen ist“¹. Die Beobachtung der Dynamik von Prozessen ist reizvoller (und trägt mehr zum Verständnis bei) als nur die Beobachtung der Resultate. In der Physik bedient man sich sehr häufig „ultraschneller Kameras“, um sehr schnelle Prozesse beobachten zu können. Bei diesen „ultraschnellen Kameras“ handelt es sich um extrem kurze Lichtpulse, die es erlauben, die Bewegung von Atomen in Molekülen zu verfolgen und so den zeitlichen Verlauf z.B. von chemischen Reaktionen zu beobachten. Die Zeitskala, auf der die Prozesse ablaufen, kann sich bis hinab in den Femtosekunden-Bereich ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s} = 0,00000000000001 \text{ s}$) erstrecken. Im Verhältnis zu einer Sekunde ist dies soviel, wie eine Sekunde im Verhältnis zu 32 Millionen Jahren. Neben der Beobachtung ist auch die aktive Steuerung von chemischen Reaktionen möglich.

Die notwendigen Lichtpulse im Bereich weniger Femtosekunden werden durch Lasersysteme erzeugt. Mit diesen Pulsen ist es auch möglich für sehr kurze Zeiten sehr hohe Lichtintensitäten bis zu $I = 10^{21} \text{ W/cm}^2$ zu erreichen [7].

Das Ziel dieser Arbeit ist die Messung und die Beschreibung der Wechselwirkung von Atomen und Molekülen in ultrakurzen und intensiven Lichtpulsen (Lichtpulsdauer: $\approx (30 - 80) \text{ fs}$, Intensitäten: $I \approx (10^{14} - 10^{15}) \text{ W/cm}^2$, Wellenlänge: 800 nm). Die vorliegende Arbeit läßt sich in zwei Teile gliedern; zum einen der Einfluß hochintensiver Lichtpulse auf die Ionisations- und Dissoziationsdynamik von Molekülen und zum anderen die Dynamik der Vielfachionisation von Atomen in intensiven Lichtfeldern. In beiden Fällen zerfällt das anfänglich neutrale System in mehrere geladene Produkte (Elektronen, Ionen).

Im ersten Teil der Arbeit wird die Ionisations- und Dissoziationsdynamik in intensiven Lichtfeldern am H_2 und D_2 untersucht. Wasserstoff und das Molekülion H_2^+ sind die einfachsten molekularen Systeme, deren ungestörte Struktur sehr gut bekannt ist. Daher eignen sie sich hervorragend als Modellsysteme, die auch teilweise Rechnungen zugänglich sind. Dabei zeigte sich, daß das Verhalten von Molekülen stark durch das

¹Aus der Presseerklärung anlässlich der Nobelpreisverleihung in Chemie 1999, Quelle: <http://www.nobel.se/announcement-99/chemty99.html>. Für seine Arbeiten auf dem Gebiet der Femtosekunden-Spektroskopie hat Prof. Ahmed H. Zewail 1999 den Nobelpreis in Chemie erhalten.

Zusammenspiel zwischen Elektronen- und Kernbewegung und dessen Störung durch das Licht bestimmt ist [8, 9]. Ein spezielles Interesse gilt dem Intensitätsbereich, in dem die Störungsrechnung die auftretenden Prozesse nicht mehr adäquat beschreiben kann. Durch den Aufbau einer neuartigen Apparatur zur hochauflösende Messung der Verteilung der kinetischen Energien von Photoionen lassen sich die verschiedenen bekannten Dissoziationskanäle des Wasserstoffmoleküls, wie z.B. die Dissoziation durch Bindungsaufweichung und Coulomb-Explosion identifizieren und detailliert untersuchen. Durch Pump-Probe Messungen (Anregung durch zwei zeitlich zueinander verzögerte Lichtpulse) läßt sich darüberhinaus die Dissoziationsdynamik von D_2^+ in starken Laserfeldern (siehe Kapitel 4) zeitaufgelöst untersuchen.

Der zweite Teil der Arbeit untersucht die Photoionisation in intensiven ultrakurzen Lichtpulsen. Bei den in dieser Arbeit beschriebenen Experimenten ist die Photonenenergie wesentlich kleiner als das Ionisationspotential. Daher ist zur Ionisation die Absorption von mehr als einem Photon aus dem Lichtfeld nötig, d.h. innerhalb der Lebensdauer der Zwischenzustände müssen im Lichtpuls ausreichend viele Photonen zur Verfügung stehen. Diese Multiphotonenionisation (MPI) wurde im sichtbaren Spektralbereich durch die Entwicklung von Lasern mit hinreichend hoher Ausgangsleistung möglich. Die ersten Messungen zur MPI an Edelgasen wurden 1966 von Voronov et al. [10] und 1968 von Agostini et al. [11] durchgeführt. Seit diesen ersten Experimenten kam es zur Entdeckung einer Reihe weiterer sogenannter „Hochintensitäts-Phänomene“ wie die Erzeugung von hochenergetischen Elektronen, von sehr kurzweiliger Strahlung (XUV) und von mehrfach geladenen Ionen mit einer unerwartet hohen Ausbeute.

Bei der Erzeugung hochenergetischer Photoelektronen werden mehr Photonen absorbiert, als zur Ionisation mindestens nötig sind. Experimentelle Messungen zeigen Photoelektronen mit kinetischen Energien im Bereich von mehreren keV. Dieses Phänomen der Ionisation über der Schwelle ATI² wurde 1979 von Agostini et al. [12] gefunden. Neben den Experimenten zur Messung der Verteilung der kinetischen Energien der Photoelektronen [13, 14, 15, 16] wurden auch Untersuchungen in Hinblick auf die Messungen der entstehenden Photonen durchgeführt. Es zeigte sich, daß Licht mit harmonischen Frequenzen der Laserfrequenz bis zur 297. Ordnung (Höhere Harmonische HH, XUV/weiche Röntgenstrahlung) [17] auftritt. In der semi-klassischen Beschreibung der MPI wird die Komplementarität dieser beiden Prozesse deutlich. Zunächst wird eine Elektron vom Atomrumpf gelöst, und anschließend im Lichtfeld beschleunigt. Unter bestimmten Anfangsbedingungen kommt das Elektron wieder zum Atomrumpf zurück und kann dort elastisch gestreut werden (ATI hoher Ordnungen) oder rekombinieren (HH, Übergang in den Grundzustand unter Aussendung eines Photons) [18, 19, 20, 21]. Ein weiteres „Hochintensitäts-Phänomen“ ist die Erzeugung von mehrfach geladenen Ionen nach der Anregung von Atomen mit intensiven Lichtpulsen mit einer sehr hohen Ionenausbeute. Verschiedene Messungen zeigten, daß es sich bei dieser Mehrfachionisation in einem

²Above Threshold Ionization

bestimmten Intensitätsbereich (unterhalb der Sättigungsintensität der einfachen Ionisation) nicht um einen sequentiellen Prozess handeln kann. Daher wird dieser Prozess auch häufig als nichtsequentielle Ionisation bezeichnet. Der zugrunde liegende Mechanismus ist noch nicht verstanden und Gegenstand intensiver Forschung.

In Rahmen dieser Arbeit wurde zum ersten Mal eine differentielle Messung zur Untersuchung der nichtsequentiellen Ionisation durchgeführt. Dabei wurde die Methode der COLTRIMS³ mit intensiven Lichtpulsen kombiniert. Bei dieser Messung wird der Impulsvektor der im Lichtpuls gebildeten Ionen gemessen. Er ist in guter Näherung gleich dem Summenimpuls der bei der Ionisation freigesetzten Elektronen. Aufgrund dieser Messungen war es erstmals möglich verschiedene der für die nichtsequentielle Ionisation vorgeschlagenen Mechanismen auszuschließen.

³Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy

2. Grundlagen

Die theoretischen Grundlagen der Wechselwirkung von intensiven Lichtfeldern mit Atomen und Molekülen werden im folgenden Kapitel kurz vorgestellt, um eine Basis für das Verständnis der experimentellen Ergebnisse zu geben (siehe hierzu auch [22, 23, 24, 8]. Der experimentelle Teil dieser Arbeit läßt sich in zwei Teile gliedern: Licht-Molekülwechselwirkung und Licht-Atomwechselwirkung. Am molekularen System wurde die molekülspezifische Dissoziationsdynamik anhand der Verteilung der kinetischen Energie der geladenen Dissoziationsprodukte untersucht. Im Bereich der Licht-Atomwechselwirkung kommt es zu einer Untersuchung der Impulsverteilung der im intensiven Lichtpuls entstandenen einfach und mehrfach geladenen Ionen.

Im folgenden Kapitel werden die Ionisationsdynamik, die Dissoziationsdynamik und die Bewegung von geladenen Teilchen im Feld der Lichtwelle behandelt.

Zunächst wird auf die Bewegung von geladenen Teilchen in einem elektromagnetischen Feld eingegangen. Dies ermöglicht die Definition von Begriffen, die für die Beschreibung der Ionisationsmechanismen hilfreich sind. Weiter zeigt sich, daß das Verständnis der Bewegung der geladenen Teilchen im elektromagnetischen Feld der Lichtwelle für die Interpretation der Meßergebnisse wesentlich ist. Warum? - Nach der Ionisation wird das Elektron im elektromagnetischen Feld der Lichtwelle beschleunigt. Die Messung der Geschwindigkeit zur Bestimmung des Impulses oder der kinetischen Energie findet außerhalb des Wechselwirkungsgebietes statt. Bei den verwendeten Lichtintensitäten kann daher ein signifikanter Beitrag zur Geschwindigkeit aus der Beschleunigung durch das elektromagnetische Feld der Lichtwelle stammen.

2.1. Bewegung eines freien Elektrons im elektromagnetischen Strahlungsfeld

Bei der Photoionisation kommt es zu einer Projektion der Wellenfunktion des Elektrons vom Grundzustand auf einen Kontinuumszustand (Volkov-Zustand [25]). Bei diesem Kontinuumszustand in Anwesenheit eines elektromagnetischen Feldes handelt es sich um eine eben Welle mit einer zeitabhängigen Phase. Diese Phase beschreibt die Zitterbewegung des Elektrons im oszillierenden elektromagnetischen Feld. Die Phase ist dabei proportional zur mittleren kinetischen Energie des Elektrons. Die mittlere kinetische Energie des Elektron läßt sich wie folgt berechnen:

2.1. Bewegung eines freien Elektrons im elektromagnetischen Strahlungsfeld

Die Kraft auf ein freies Elektron mit der Ladung q und der Geschwindigkeit \vec{v} in einem elektromagnetischen Feld beträgt:

$$\vec{F} = m\vec{v} = q(\vec{E} + \vec{v} \otimes \vec{B}). \quad \text{Lorentzkraft} \quad (2.1)$$

Das elektrische und das magnetische Feld einer linear polarisierten ebenen Lichtwelle mit der Frequenz ω läßt sich schreiben als:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 \sin(\vec{k}\vec{r} - \omega t + \phi) \quad (2.2)$$

und

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \vec{B}_0 \sin(\vec{k}\vec{r} - \omega t + \phi), \quad (2.3)$$

mit $|\vec{B}_0| = |\vec{E}_0|/c$, \vec{k} dem Wellenvektor ($|\vec{k}| = \omega/c$, c der Lichtgeschwindigkeit) und ϕ einer beliebigen Phase. Für $v \ll c$ läßt sich der 2. Term $\vec{v} \otimes \vec{B}$ in Gleichung 2.1 vernachlässigen¹ (nicht-relativistischer Grenzfall). Damit erhält man für die mittlere kinetische Energie $\langle E_{kin} \rangle_T$ eines Elektrons in einem elektrischen Feld (2.2) gemittelt über eine Periode T des Lichtfeldes folgenden Term (Anfangsgeschwindigkeit $\vec{v}_0 = 0$):

$$\langle E_{kin} \rangle_T = \frac{1}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} E_{kin} dt = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \propto I\lambda^2. \quad (2.4)$$

Diese mittlere kinetische Energie wird häufig als ponderomotive Energie U_p bezeichnet. Die ponderomotorische Energie eines freien Elektrons in einem Lichtfeld mit einer Wellenlänge 800 nm und einer Intensität von $I = 10^{14}$ W/cm² beträgt z.B. 6 eV. Im Experiment kommt es im Allgemeinen zum Einsatz von gepulster Lichtstrahlung. Dies bedeutet, daß die Amplitude E_0 eine langsam mit der Zeit veränderliche Größe (im Vergleich zu einer Oszillationsperiode des Lichtes) ist. Nachdem der Lichtpuls vorüber ist, findet die Messung der Geschwindigkeit (bzw. kinetischen Energie) der geladenen Teilchen statt. Die Energie $E_{kin,\infty}$, die dem geladenen Teilchen von der mittleren kinetischen Energie U_p im Feld für große Zeiten ($t \rightarrow \infty$) verbleibt, beträgt (unter der Annahme: $2\pi/\omega \ll$ Pulsdauer² und $\vec{v}_0 = 0$):

$$E_{kin,\infty} = 2 \left(\frac{q}{e} \right)^2 U_p \cos^2(\phi), \quad (2.5)$$

mit e der Elementarladung, q der Ladung des Teilchens, ϕ der Phase des Feldes und U_p dem ponderomotiven Potential zum Startzeitpunkt. Es zeigt sich, daß die kinetische Energie $E_{kin,\infty}$ der geladenen Teilchen von den Anfangsbedingungen ϕ abhängt. Für ein Elektron zum Beispiel, das im Maximum der elektrischen Feldstärke ($\phi = 0$) erzeugt wird (z.B. durch elektrische Feldionisation), beträgt die verbleibende Energie $E_{kin,\infty} = 0$.

¹Die Kraft, die durch den Term $\vec{v} \otimes \vec{B}$ hervorgerufen wird, ist um den Faktor v/c kleiner als die Kraft aufgrund des elektrischen Feldes.

²in diesem Experiment beträgt $2\pi/\omega \approx 2.6$ fs und die Pulsdauer 28 fs

2.1.1. Ponderomotorisches Potential

In dem vorausgegangenen Abschnitt wurde die Bewegung eines geladenen Teilchens in einer ebenen Lichtwelle beschrieben. In Experimenten zur Wechselwirkung von intensiver Strahlung mit Materie ist es im Allgemeinen notwendig die Strahlung zu fokussieren. Damit erhält man eine räumlich inhomogene Intensitätsverteilung des Lichtes. Sie führt zu einer zusätzlichen Kraft auf das geladene Teilchen. Die Kraft läßt sich als Gradient des ponderomotorischen Potentials schreiben.

Die Bewegung des Elektrons in einer oszillierenden Lichtwelle besteht aus einer Zitterbewegung³ und einer Driftbewegung. Die ponderomotive Kraft beschreibt den Austausch von Energie zwischen der Zitterbewegung und der Driftbewegung des geladenen Teilchens. Vereinfacht läßt sich dies wie folgt veranschaulichen: Unabhängig vom Startzeitpunkt (Phase des Feldes) des Elektrons im elektromagnetischen Feld der Lichtwelle, wird das Elektron während insgesamt einer halben Periode des Lichtfeldes beschleunigt und während einer halben Periode abgebremst (in entgegengesetzter Richtung beschleunigt). Somit hat das Elektron nach einer Lichtperiode wieder seine Anfangsgeschwindigkeit \vec{v}_0 . Bewegt sich nun das Elektron aus einem Gebiet hoher Feldstärke in ein Gebiet niedriger Feldstärke, so kann das schwache (abbremsende) elektrische Feld nicht mehr das starke (beschleunigende) Feld kompensieren, und das Elektron besitzt nach einer Periode eine von \vec{v}_0 verschiedene Geschwindigkeit. Die Änderung des Impulses kann durch eine zeitgemittelte Kraft auf das Elektron ausgedrückt werden.

Eine kurze Herleitung dieser Kraft auf ein geladenes Teilchen (in diesem Fall ein Elektron mit der Ladung $q = e$) ist im Folgenden gegeben.

Im ladungsfreien Raum läßt sich das elektrische Feld \vec{E} und das magnetische Feld \vec{B} durch ein Vektorpotential \vec{A} ausdrücken, mit $\vec{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\vec{A}$ und $\vec{B} = \nabla \otimes \vec{A}$ (Coulomb-Eichung: $\nabla \cdot \vec{A} = 0$ [26]). Der kanonische Impuls eines Elektrons in einem elektromagnetischen Feld ist durch [26]:

$$\vec{p} = m\vec{v} + e\vec{A}(\vec{r}(t), t) \quad (2.6)$$

gegeben. Die totale Ableitung nach der Zeit und das Einsetzen von Gleichung 2.1 führt zu der folgenden Gleichung:

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = \vec{F}(t) + e \frac{d\vec{A}(\vec{r}(t), t)}{dt} \quad (2.7)$$

$$\begin{aligned} &= \vec{F}(t) + e \frac{\partial \vec{A}(\vec{r}(t), t)}{\partial t} + e(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{A}(\vec{r}(t), t) \\ &= -e \frac{\partial \vec{A}(\vec{r}(t), t)}{\partial t} + e\vec{v} \otimes (\nabla \otimes \vec{A}) + e \frac{\partial \vec{A}(\vec{r}(t), t)}{\partial t} + e(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{A}(\vec{r}(t), t) \\ &= e\nabla(\vec{v} \cdot \vec{A}), \end{aligned} \quad (2.8)$$

³quiver motion

2.1. Bewegung eines freien Elektrons im elektromagnetischen Strahlungsfeld

Der fett gedruckte Buchstabe \vec{A} bedeutet, daß sich der Differentialoperator ∇ nur auf \vec{A} bezieht.

Für die Geschwindigkeit \vec{v} läßt sich der folgende Ansatz machen:

$$\vec{v} = \vec{v}_0 - \frac{e\vec{A}}{m} + \delta\vec{v}. \quad (2.9)$$

Der erste Term \vec{v}_0 ist eine Konstante und beschreibt die Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons. Der zweite Term $-\frac{e\vec{A}}{m}$ beschreibt die Zitterbewegung des Elektrons im oszillierenden elektromagnetischen Feld. Der dritte Term beschreibt die Änderung der Bewegung aufgrund der Inhomogenitäten der räumlichen Intensitätsverteilung des Lichtes. Damit erhält man für den kanonischen Impuls des Elektrons:

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = \frac{d}{dt}(m\vec{v} + e\vec{A}(\vec{r}, t)). \quad (2.10)$$

Mit Hilfe von Gleichung 2.9 erhält man:

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = \frac{d}{dt}(m\vec{v}_0 - e\vec{A}(\vec{r}, t) + m\delta\vec{v} + e\vec{A}(\vec{r}, t)) = \frac{d}{dt}(m\delta\vec{v}). \quad (2.11)$$

Durch Substitution von \vec{v} aus Gleichung 2.9 in Gleichung 2.8 und Gleichsetzen von Gleichung 2.11 und Gleichung 2.8 folgt:

$$m \frac{d\delta\vec{v}}{dt} = e \nabla \left((\vec{v}_0 + \frac{e\vec{A}}{m} + \delta\vec{v}) \cdot \vec{A} \right). \quad (2.12)$$

Mittelt man nun den linken und rechten Teil der obigen Gleichung über eine Oszillationsperiode T des Lichtes⁴, ergibt sich:

$$\left\langle m \frac{d\delta\vec{v}}{dt} \right\rangle_T = \underbrace{\left\langle e \nabla (\vec{v}_0 \cdot \vec{A}) \right\rangle_T}_{=0} + \left\langle e \nabla \left(\frac{e\vec{A}}{m} \cdot \vec{A} \right) \right\rangle_T + \underbrace{\left\langle e \nabla (\delta\vec{v} \cdot \vec{A}) \right\rangle_T}_{\approx 0}. \quad (2.13)$$

Der erste Term auf der rechten Seite der Gleichung ist durch die Mittelung gleich Null, der dritte Term auf der rechten Seite ist ein Term höherer Ordnung in $\delta\vec{v}$ und kann vernachlässigt werden.

Schließlich ergibt sich damit:

$$\left\langle m \frac{d\delta\vec{v}}{dt} \right\rangle_T = \left\langle \frac{e^2}{2m} \nabla \vec{A}^2 \right\rangle_T. \quad (2.14)$$

Diese Gleichung läßt sich noch umformen und man erhält:

⁴ $\langle \dots \rangle_T \hat{=} \frac{1}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} \dots dt$ mit beliebigem t_0

$$\langle \vec{F} \rangle_T = \left\langle m \frac{d\delta \vec{v}}{dt} \right\rangle_T = -\nabla U_p, \quad (2.15)$$

mit $U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2}$ (der zusätzliche Faktor $1/2$ im Vergleich zu Gleichung 2.14 ergibt sich aus der zeitlichen Mittelung). Damit ergibt sich eine zeitgemittelte Kraft auf das Elektron in Richtung des räumlichen Gradienten der Intensitätsverteilung. Der Betrag der zwischen der Zitterbewegung und Driftbewegung ausgetauschten Energie beträgt maximal U_p .

Im Experiment ist es nur durch den Einsatz von gepulster Lichtstrahlung möglich, sehr hohe Lichtintensitäten zu erzeugen. Dadurch wird der Energieaustausch zwischen Zitterbewegung und Driftbewegung des Elektrons durch die Wechselwirkungszeit mit dem Lichtpuls bestimmt. In Abhängigkeit von der Pulsdauer des Lichtes τ_p und der räumlichen Ausdehnung des Laserfokus unterscheidet man dabei drei Gebiete (siehe [27]):

- Kurzpulsregime: Die Dauer der Lichtpulse ist so kurz, daß sich das Elektron nicht von seinem Entstehungsort wegbewegen kann. Es kommt zu keinem nennenswerten Energieübertrag auf das Elektron.
- Zwischenbereich: In diesem Bereich kommt es zu einem teilweisen Energieübertrag von der Zitterbewegung in die Driftbewegung. Entsteht ein Elektron zum Zeitpunkt t_0 , so beträgt die übertragene Energie $\int_{t_0}^{t_0+\tau} \frac{\partial U_p(\vec{r}(t), t)}{\partial t} dt$, mit τ der Wechselwirkungszeit zwischen Elektron und Lichtfeld.
- Langpulsregime: Die Dauer der Lichtpulse ist so groß, daß die gesamte Energie der Zitterbewegung auf die Driftbewegung des Elektrons (beim „Herunterrollen“ der räumlichen Intensitätsverteilung) übertragen wird.

Die Größenordnung der Wegstrecke, die von einem Elektron während einer Oszillationsperiode zurückgelegt wird, soll nun im Folgenden abgeschätzt werden. Der zurückgelegte Weg ist dabei durch die Beschleunigung im Feld und die Anfangsgeschwindigkeit bestimmt. Bei einer Lichtintensität von 10^{14} W/cm^2 und einer Wellenlänge von 800 nm beträgt die Amplitude der Oszillationsbewegung (Zitterbewegung) eines freien Elektrons $0,8 \text{ nm}$. Ein Elektron mit einer Anfangsgeschwindigkeit von $0,1c$ (c : Lichtgeschwindigkeit) bewegt sich in einem feldfreien Raum während einer Oszillationsperiode ($2,6 \text{ fs}$) 80 nm weit von seinem Anfangsort weg. Vergleicht man diese Werte mit der transversalen Ausdehnung eines fokussierten Laserstrahls im Bereich von typischerweise $30 \mu\text{m}$, so zeigt sich, daß sich das Elektron während der Pulsdauer (30 fs) nicht signifikant von seinem Entstehungsort wegbewegt.

Damit liegen die in dieser Arbeit vorgestellten Experiment eindeutig im Kurzpulsregime und es kommt somit zu keinem Energieübertrag von der Zitterbewegung auf die Driftbewegung des Elektrons.

2.2. Photoionisationsmechanismen (Einfache Ionisation)

Die Ionisation von Atomen und Molekülen in intensiven Lichtfeldern kann in zwei Bereiche unterteilt werden. Im Bereich der Multiphotonenionisation wird der Ionisationsprozess als Absorption diskreter Photonen beschrieben, im Bereich der elektrischen Feldionisation dagegen als quasi-statische elektrische Feldionisation.

Der Keldysh Parameter γ [28] beschreibt den Übergang zwischen dem Bereich der Multiphotonenionisation und dem Bereich der quasi-statischen Feldionisation:

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_I}{2U_p}}, \quad (2.16)$$

mit E_I dem Ionisationspotential und $U_p = \frac{e^2 F_0^2}{4m\omega^2}$ dem ponderomotivem Potential (e : Elementarladung, F_0 : Amplitude des elektrischen Feldes der Lichtwelle, ω : Lichtfrequenz und m : Masse des Elektrons, siehe Abschnitt 2.1). Für $\gamma > 1$ ist die Beschreibung des Ionisationsprozesses als Absorption diskreter Photonen sinnvoll, für $\gamma < 1$ hingegen läßt sich der Ionisationsprozess mit der quasi-statischen elektrischen Feldionisation beschreiben. In den nächsten beiden Abschnitten werden diese Mechanismen näher erläutert.

2.2.1. Multiphotonenionisation ($\gamma > 1$)

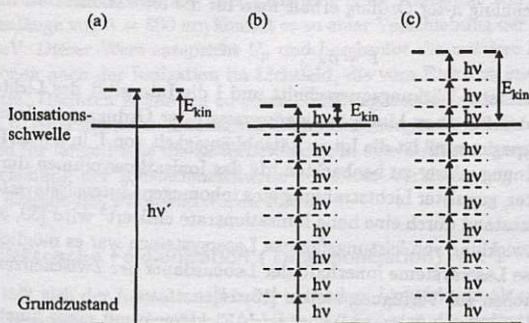


Abbildung 2.1.: Ionisationsmechanismen im Photonenbild

In Abbildung 2.1 sind die Ionisationsmechanismen im Photonenbild dargestellt. Abbildung 2.1a zeigt die Ein-Photon-Ionisation. Durch Absorption eines Photons mit der

2. Grundlagen

Energie $h\nu'$ wird das Elektron freigesetzt. Die kinetische Energie des Elektrons ist die Differenz zwischen der Photonenenergie $h\nu'$ und dem Ionisationspotential E_I :

$$E_{kin} = h\nu' - E_I. \quad (2.17)$$

Die Ionisationsrate läßt sich bei geringer Lichtintensität mit der Störungsrechnung 1. Ordnung beschreiben und führt zu Fermis goldener Regel [29]. Reicht die Energie eines Photons nicht aus, um das System zu photoionisieren, kommt man in den Bereich der Multiphotonenionisation (siehe Abb. 2.1b). Hierbei absorbiert das Atom oder Molekül mehrere Photonen aus einem Lichtfeld. Im Fall der nichtresonanten Multiphotonenionisation sind keine Eigenzustände, abgesehen vom Anfangs- und Endzustand, des Atoms in den Absorptionsprozeß involviert. Nach der Absorption des ersten Photons mit der Energie $h\nu$ muß das System innerhalb der Lebensdauer des ersten Zwischenzustandes ein weiteres Photon absorbieren, um in den nächsten zu gelangen. Innerhalb der Lebensdauer des nächsten Zwischenzustandes kann das System nun wieder ein Photon absorbieren, bis die Ionisationsschwelle überschritten ist.

Die Lebensdauer solcher Zwischenzustände ist durch die Heisenbergsche Zeit-Energie Unschärfe gegeben $\Delta E \Delta t \geq \hbar$, wobei ΔE der Energieabstand zum nächsten Energieeigenwert des Systems ist. Typische Lebensdauern solcher Zwischenzustände liegen im sub-fs-Bereich. Die kinetische Energie des Elektrons nach der Photoionisation ist:

$$E_{kin} = n_{min}h\nu - E_I. \quad (2.18)$$

Mittels Störungsrechnung n-ter Ordnung erhält man für die Ionisationsrate Γ :

$$\Gamma = \sigma I^n, \quad (2.19)$$

wobei σ der generalisierte Wirkungsquerschnitt und I die Intensität des Lichtes ist. Gleichung 2.19 zeigt, daß für einen Multiphotonenprozess n-ter Ordnung die Ionenausbeute $\propto I^n$ ist [15]. Experimentell ist die Intensitätsabhängigkeit von Γ in einem Ionisationsprozeß hoher Ordnung schwer zu beobachten, da das Ionisationsvolumen durch die Verwendung fokussierter, gepulster Lichtstrahlung eine inhomogene Intensitätsverteilung hat und der Ausgangszustand durch eine hohe Ionisationsrate entleert⁵ wird [30, 31, 32].

Erst durch die Entwicklung von leistungsfähigen Lasersystemen war es möglich MPI zu beobachten, da diese Lasersysteme innerhalb der Lebensdauer der Zwischenzustände hinreichend viele Photonen zur Verfügung stellen [10, 11].

Erhöht man die Intensität weiter, so werden auch Elektronen mit einer kinetischen Energie beobachtet, die größer als die Photonenenergie ist ($E_{kin} > h\nu$). Der dazugehörige Prozess wird Ionisation über die Schwelle (ATI^6) genannt. Das Elektron absorbiert mehr als die minimale Anzahl n_{min} von Photonen, die zur Ionisation nötig sind,

⁵Sättigungseffekt

⁶Above Threshold Ionization

aus dem Lichtfeld. In Abbildung 2.1c ist dieser Prozeß schematisch angedeutet. In der Verteilung der kinetischen Energie der Elektronen führt dies zu regelmäßigen Strukturen im Abstand der Photonenenergie $h\nu$ [12].

$$E_{\text{kin}} = m h \nu - E_I \quad \text{mit } m > n_{\text{min}} \quad (2.20)$$

Bei resonanter Multiphotonenionisation ist der energetische Abstand zwischen dem Grundzustand und einem angeregten Zustand gleich dem Vielfachen der Photonenenergie. Dies führt im Allgemeinen zu einer drastischen Erhöhung der Ionisationsrate.

Bei hohen Lichtintensitäten kommt es zu resonanten Erhöhungen der Ionenausbeuten durch die Verschiebung von Energieniveaus durch das Lichtfeld. Der Prozess wird AC-Stark-Verschiebung genannt. Analog zum Stark-Effekt werden durch das elektrische Feld der Lichtwelle die Energieniveaus verschoben. Diese Verschiebung ist für die einzelnen Zustände in Abhängigkeit von der Lichtintensität verschieden stark. Für bestimmte Lichtintensitäten liegen dann die Energieniveaus des Anfangszustandes und eines angeregten Zustandes um ein Vielfaches der Photonenenergie auseinander, so daß es zu einer resonanten Erhöhung der Ionisationsrate [33] kommt.

Durch die Erhöhung der Ionisationsschwelle ändert sich die kinetische Energie der Photoelektronen im Vergleich zu Gleichung 2.20 wie folgt:

$$E_{\text{kin}} = n h \nu - (E_I(I) - E_g(I)) \quad (2.21)$$

mit $E_I(I) = E_I + U_p$ als Ionisationsschwelle, die von der Lichtintensität abhängt und $E_g(I)$ als Grundzustandsenergie. Bei Licht mit einer Intensität von $I = 10^{13} \text{ W/cm}^2$, einer Wellenlänge von $\lambda = 800 \text{ nm}$ kommt es zu einer Verschiebung der Ionisationsschwelle um $0,6 \text{ eV}$. Dieser Wert entspricht U_p und beschreibt die mittlere kinetische Energie der Elektronen nach der Ionisation im Lichtfeld, die vom Elektron zusätzlich absorbiert werden muss. Dadurch kommt es zu einer Erhöhung der Ionisationsschwelle und damit verbunden zu einer kleineren kinetischen Überschussenergie. Wie in Abschnitt 2.1 gezeigt wurde, wird für lange Pulse die Zitterbewegung in eine Driftbewegung umgewandelt, so daß die Erhöhung der Ionisationsschwelle zu keiner Verkleinerung der beobachtbaren kinetischen Energie der Photoelektronen führt.

2.2.2. Elektrische Feldionisation (Tunnelionisation) $\gamma < 1$

Für $\gamma < 1$ läßt sich der Ionisationsprozess in starken Lichtfeldern als quasistatische elektrische Feldionisation beschreiben. Abbildung 2.2a zeigt die potentielle Energie eines Elektrons in dem Coulombpotential eines Kerns ohne äußeres Feld. Zur Veranschaulichung sind zwei gebundene Zustände eingezeichnet.

Abbildung 2.2b zeigt schematisch die potentielle Energie des Elektrons, die durch die Überlagerung der Coulombkraft des Kerns mit einem äußeren elektrischen Feld gebildet wird. Deutlich sieht man, daß die vorher gebundenen Zustände frei (I) sind oder

2. Grundlagen

mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit durch einen klassisch verbotenen Bereich tunneln können (II). Ein Elektron mit der ungestörten Bindungsenergie E_I erreicht die Spitze der Potentialbarriere bei einer elektrischen Feldstärke E_{krit} [22]:

$$E_{\text{krit}} = \frac{E_I^2}{4Ze^3}. \quad Z: \text{Ladungszustand des entstehenden Ions} \quad (2.22)$$

Die Amplitude des elektrischen Feldes eines Lichtpulses mit einer Intensität von $4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ beträgt $5 \times 10^9 \text{ V/cm}$ und entspricht damit einer atomaren Einheit der elektrischen Feldstärke (entspricht der Feldstärke, die eine Elementarladung im Abstand eines Bohrschen Radius erzeugt).

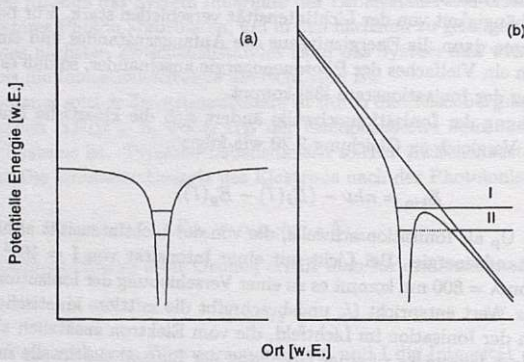


Abbildung 2.2.: Prinzip der elektrischen Feldionisation

Die Tunnelionisationsrate kann mit Hilfe der ADK-Formel⁷ [5] (in atomaren Einheiten) für ein Atom in einem elektrischen Wechselfeld mit der Amplitude F näherungsweise bestimmt werden:

$$w \propto e^{-\frac{2}{3} \frac{(2E_I)^{3/2}}{F}}, \quad (2.23)$$

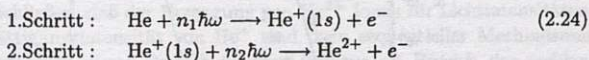
mit E_I der Bindungsenergie des Elektrons. Die Exponentialfunktion stellt die Transmissionswahrscheinlichkeit der Elektronen durch die Barriere (der klassisch verbotene Bereich) dar und wird auch als Tunnelintegral bezeichnet. Die Tunnelformel beschreibt

⁷benannt nach M. V. Ammosov, N. B. Delone und V.P. Krainov

die Ionisation von neutralen Atomen, aber auch von einfach und mehrfach geladenen Ionen. Die Vorfaktoren erlauben eine quantitative Aussage über den Ionisationsprozeß.

2.3. Mehrfache Ionisation (Nichtsequentielle Ionisation)

Die Erzeugung von mehrfach geladenen Ionen nach der Anregung neutraler Atome durch intensive Lichtstrahlung ist bis heute noch nicht verstanden und Gegenstand intensiver Forschung. In verschiedenen Messungen [1, 34, 35, 36, 37] zeigte sich, daß die Erzeugung von mehrfach geladenen Ionen in starken Laserfeldern ($\gamma < 1$) in einem bestimmten Intensitätsbereich nicht als sequentieller Prozeß durch quasistatische Feldionisation beschrieben werden kann. Das bedeutet, daß die Doppelionisation zum Beispiel von Helium nicht in zwei unabhängigen Schritten erfolgt:



Als Beispiel ist die Messung von Walker et al. [1] in Abbildung 2.3 dargestellt.

Die Abbildung zeigt in Abhängigkeit von der Lichtintensität die gemessene (integrale) Ionenausbeute von He^+ und He^{2+} für linear polarisiertes Licht bei einer Wellenlänge von 780 nm und einer Pulsdauer des Lichtes von 100 fs.

Die Ionenausbeute von He^+ steigt zunächst für kleine Intensitäten mit wachsender Lichtintensität I sehr stark an. Bei hohen Lichtintensitäten hingegen zeigt die Ionenausbeute nur einen sehr kleinen Anstieg. Das Abknicken der Kurve liegt bei einer Intensität von $I \approx 9 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Diese Intensität wird als Sättigungsintensität bezeichnet. Oberhalb der Sättigungsintensität ist die Ionenausbeute proportional zu $I^{3/2}$ [37]. Der Grund für dieses Verhalten ist das Vorhandensein einer räumlichen Intensitätsverteilung im Laserfokus. Oberhalb der Sättigungsintensität sind alle Atome innerhalb eines bestimmten Volumens (Sättigungsgebiet) im Laserfokus ionisiert. Die Ionen, die innerhalb des Sättigungsgebietes gebildet werden, liefern den Hauptbeitrag der nachgewiesenen Ionen. Wird die Intensität weiter erhöht, so wächst nur das Volumen des Sättigungsgebietes. Die Vergrößerung des Volumens ist dabei $\propto I^{3/2}$ [37]. Es handelt sich also bei dieser Steigung nur um ein experimentelles Artefakt.

Die He^{2+} Ionenausbeute zeigt für geringe Intensitäten ein ähnliches Verhalten wie die Ionenausbeute von He^+ . Die Ionenausbeuten von He^+ und He^{2+} verlaufen über einen weiten Bereich nahezu parallel. Jedoch zeigt sich im Bereich der Sättigungsintensität von He^+ ein Art Knie oder Schulter in der Ionenausbeute von He^{2+} . Die Sättigung der He^{2+} Ausbeute wird in dieser Abbildung nicht erreicht.

Die durchgezogene Kurve zeigt die mit Hilfe der ADK-Formel (siehe Abschnitt 2.2.2) berechnete Ionenausbeute von He^+ . Die Übereinstimmung mit den experimentellen Da-

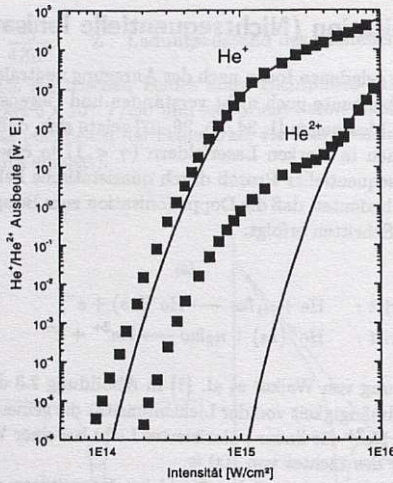
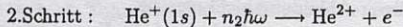
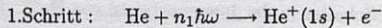


Abbildung 2.3.: Gemessene Abhängigkeit der Ionenausbeute von He^+ und He^{2+} von der Lichtintensität (Wellenlänge: 780 nm, Pulsdauer: 100 fs, linear polarisiertes Licht). Die durchgezogenen Kurven zeigen die berechneten Ionenausbeuten (Näheres siehe Text). Die Daten wurden aus einer Messung von Walker et al. [1] entnommen.

ten ist über den dargestellten Intensitätsbereich $I = 7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $I = 1 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ sehr gut.

Die durchgezogene Kurve in Abbildung 2.3 zeigt die berechnete Ionenausbeute von He^{2+} unter der Annahme von sequentieller quasistatischer Feldionisation, d.h. die Doppelionisation von Helium findet in zwei unabhängigen Schritten statt:



Die Ionisationsraten im ersten und zweiten Schritt wurden dabei mit Hilfe der ADK-

Formel berechnet (siehe Abschnitt 2.2.2). Die Messung zeigt eine starke Abweichung der experimentellen Daten von den theoretischen Werten für He^{2+} im Bereich geringer Intensitäten. Das Verhältnis zwischen der gemessenen und der berechneten Ionausbeute beträgt z.B. 6 Größenordnungen bei einer Lichtintensität von $I \approx 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$:

$$\frac{\text{He}_{\text{exp}}^{2+}}{\text{He}_{\text{ADK}}^{2+}} \approx 10^6. \quad (2.25)$$

Die mit der ADK-Formel berechneten Raten zeigen nur für Lichtintensitäten oberhalb der Sättigungsintensität für die Bildung von He^+ eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Dies legt die Vermutung nahe, daß bei der Bildung von He^{2+} im Bereich unterhalb des Knies ein nichtsequentieller Prozeß dominiert. Oberhalb der He^+ Sättigungsintensität befinden sich im zentralen Bereich des Laserfokus nur noch He^+ und He^{2+} Ionen, so daß eine direkte Doppelionisation von neutralen Heliumatomen nicht mehr möglich ist und die Ionausbeute für He^{2+} abknickt.

Daraus läßt sich schließen, daß der Erzeugung von He^{2+} Ionen für Lichtintensitäten, die kleiner als die Sättigungsintensität von He^+ sind, kein sequentieller Mechanismus zugrunde liegt. Daher wird dieser Bereich in der Literatur als Bereich der nichtsequentiellen Ionisation bezeichnet. Ein nichtsequentieller Ionisationsmechanismus wurde auch für eine Reihe anderer Atome wie z.B. Neon [35, 38, 37], Krypton [37, 39], Xenon [37], Argon [40, 37], Indium [41] usw. beobachtet. Um diesen nichtsequentiellen Mechanismus im Tunnelionisationsregime ($\gamma < 1$) zu verstehen, wurden verschiedene Modelle vorgeschlagen. Die wichtigsten, im Folgenden kurz dargestellten 3 Modelle, sind jeweils am Ende mit einer kurzen Bewertung versehen (+ für positive Fakten, d.h. Übereinstimmung mit dem Experiment, und - für Fakten, die mit dem Modell nicht erklärt werden können). Eine genauere Diskussion erfolgt im Zusammenhang mit der Interpretation der experimentellen Ergebnisse in Kapitel 5.

• „Rescattering“ Modell [42]

In Abbildung 2.4 ist eine schematische Darstellung dieses Mechanismus gezeigt. Zunächst wird zum Zeitpunkt t_0 ein Elektron freigesetzt, daß nun im Lichtfeld beschleunigt wird. Unter bestimmten Voraussetzungen kommt dieses Elektron zum Ion zu einem Zeitpunkt t_1 zurück und kann dann durch Stoßionisation eine weiteres Elektron oder weitere Elektronen freisetzen. Die Bedingung für die Rückkehr des Elektrons und die kinetische Energie zum Zeitpunkt der Rückkehr hängen von der Phase der Lichtwelle zum Startzeitpunkt und der Amplitude des elektrischen Feldes ab (näheres hierzu siehe Kapitel 5).

- + Sehr erfolgreiches Modell zur Beschreibung verschiedener Prozesse in starken Laserfeldern wie zum Beispiel der Erzeugung von Höheren Harmonischen, der Verteilung der kinetischen Energie und der Winkelverteilung von ATI Elektronen im hochenergetischen Bereich [42, 43].

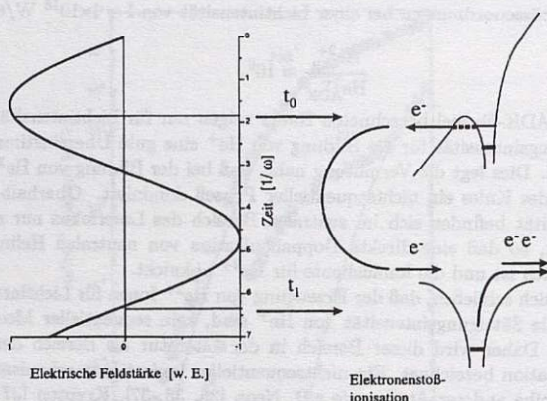


Abbildung 2.4.: Schematische Darstellung des „Rescattering“ Prozesses (näheres siehe Text)

- + Die Abhängigkeit der Ionenausbeute von $\text{He}^+/\text{He}^{2+}$ vom Polarisationszustand (Elliptizität) der Lichtwelle [23] hat gezeigt, daß die Ionenausbeute von He^{2+} im Bereich der nichtsequentiellen Ionisation (niedrige Intensität) mit zunehmender Elliptizität schneller abnimmt als im Bereich der sequentiellen Ionisation (hohe Intensität). Bei He^+ hingegen ist die Abnahme der Ionenausbeute mit zunehmender Elliptizität unabhängig von der Intensität. Im Rahmen des „Rescattering“-Modells läßt sich dieses Verhalten qualitativ damit erklären, daß mit zunehmender Elliptizität der Überlapp der Wellenfunktion des zurückkommenden Elektrons mit dem Ionenrumpf abnimmt und so eine Stoßionisation unwahrscheinlicher wird.
- + Neuere Ansätze zur Berechnung der totalen Ionisationsraten zeigen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten [44].
- Dieses Modell impliziert eine Schwelle, die jedoch experimentell nicht beobachtet wurde. Für niedrige Lichtintensitäten ist die kinetische Energie des zurückkommenden Elektrons kleiner als die Ionisationsenergie für das nächste

Elektron, so daß für kleine Lichtintensitäten der nichtsequentielle Mechanismus verschwinden sollte.

• „Collective Tunneling Ionization“ (CTI)

Dieses neue quantenmechanische Modell von Eichmann et al. [39], das am Max-Born-Institut entwickelt wurde, beschreibt nichtsequentielle Ionisation als einen kollektiven Tunnelprozeß von zwei Elektronen. Numerische Rechnungen zeigen, daß dies für Elektronen möglich ist, die sich im dynamischen Gleichgewicht etwa im gleichen Abstand vom Kern befinden. Sobald die Elektronen jedoch unterschiedliche Abstände vom Kern einnehmen, kommt es zu einem sofortigen Wiedereinfangen eines der Elektronen.

- + Dieser Prozeß existiert in statischen Feldern und für einen „half-cycle-pulse“.
- Die berechneten Ionisationsraten sind zu klein, um die gemessenen Ionenausbeuten in starken Laserfeldern zu erklären.

• „Shake“ Prozess

Dieses Modell wurde zur Interpretation der Doppelionisation durch Photonen entwickelt, die eine Energie besitzen, die größer als die Doppelionisationsschwelle ist. Zur Doppelionisation kommt es hier, indem nach Absorption des Photons zunächst ein Elektron photoionisiert wird. Dieses Elektron entfernt sich so schnell vom Ionenrumpf, daß sich das verbleibende Elektron nicht adiabatisch an das ionische Potential anpassen kann und in das Kontinuum geschüttelt wird (shaken off). Messungen von Wehlitz et. al. [45] zur Photoionisation von He mit hochenergetischen Photonen (Energie der Photonen ≈ 100 eV) zeigen ein Verhältnis der Ionenausbeuten von $\text{He}^{2+}/\text{He}^+$ im Bereich 0,03 - 0,045, die mit diesem Modell erklärt werden können.

Übertragen auf die Photoionisation in einem hochintensiven Lichtpuls würde es im Rahmen dieses Modells zur Doppelionisation kommen, indem zunächst ein Elektron durch Feldionisation freigesetzt und durch das Lichtfeld schnell vom Ion entfernt wird. Das verbleibende Elektron kann sich nicht adiabatisch an das neue ionische Potential anpassen und wird in das Kontinuum geschüttelt.

Fittinghoff et al. [34] haben gezeigt, daß es möglich ist die gemessenen Ionisationsraten unter Benutzung des obigen Verhältnisses $\text{He}^{2+}/\text{He}^+ = 0,03 - 0,045$ und eines willkürlich gewählten Parameters sehr gut zu reproduzieren. Bei dem Parameter handelt es sich um eine kritische Schwellenintensität für den nichtsequentiellen Prozesses.

- + Die berechneten Ionenausbeuten stimmen gut mit den gemessenen Daten überein.

- Eine Abhängigkeit des nichtsequentiellen Prozesses von der Elliptizität des Laserlichtes kann mit diesem Modell nicht erklärt werden.

Neben diesen Modellen gibt es eine Reihe von quantitativen theoretischen Ansätzen zur Klärung der nichtsequentiellen Ionisation von Helium:

- **S-Matrix Theorie** Becker und Faisal [46, 47, 48] benutzten die S-Matrix Theorie, um den nichtsequentiellen Ionisationsprozeß zu berechnen. Das Resultat dieser Rechnungen zeigt, daß die im Rahmen dieser Theorie definierten „Rescattering“- und „Shake“-Prozesse keinen dominanten Beitrag haben. Der Hauptanteil der nichtsequentiellen Ionisation ist durch einen anderen Mechanismus gegeben. Zunächst absorbiert das erste Elektron in einem virtuellen Prozeß analog zum ATI Prozeß eine Reihe von Photonen. Anschließend teilt das erste Elektron diese Energie mit dem zweiten Elektron durch Elektronenkorrelation bis beide Elektronen über genügend Energie verfügen, um die Bindungsenergie zu überwinden. Die Übereinstimmung mit den experimentellen totalen Ionenausbeuten ist hervorragend. Es besteht auch eine gute Übereinstimmung für andere Laserparameter und Atome [48, 47]. Jedoch läßt sich aus der Rechnung keine Information über eine zeitliche Abfolge der einzelnen Schritte machen. Die Rechnung liefert bisher nur Informationen über die integralen Raten. Für die Abhängigkeit der Ionenausbeuten von dem Polarisationszustand des eingestrahnten Lichtes liegen keine Rechnungen vor.

- **Numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung**

Das anscheinend triviale Problem der numerischen Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung für Helium in einem elektromagnetischen Feld stößt in Wirklichkeit an die Grenzen moderner Computersysteme. In der Gruppe von Taylor [49, 50, 51] werden solche Rechnung mit Hilfe einer Cray T3D MCN512-8 (Rechner mit 512 Alpha Prozessoren) durchgeführt. Die Resultate zeigen, daß neben dem sequentiellen auch ein nichtsequentieller Prozeß zur Doppelionisation von Helium beiträgt. Der genaue Mechanismus, der dieser nichtsequentiellen Ionisation zugrunde liegt, ist jedoch aus den Simulationen bisher nicht erkennbar.

- **Quantitative Rechnungen zum Rescattering Mechanismus**

Eine vereinfachte quantenmechanische Rechnung ist von Watson et al. [52] durchgeführt worden. In dieser Rechnung werden die zwei Elektronen als unabhängige Teilchen beschrieben. Sie bewegen sich in einem effektiven Potential, das sich aus der Wechselwirkung mit der Ladungsverteilung des jeweils anderen Elektrons, dem Kern und der Lichtwelle ergibt. Für das äußere Elektron wird angenommen, daß es sich bei dem durch die Ladungsverteilung des inneren Elektrons gebildeten Potentials um ein zeitunabhängiges Potential handelt. Hingegen erfährt das innere

Elektron durch die Ladungsverteilung des äußeren Elektrons ein zeitabhängiges Potential. Die Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen wird durch den Coulomb-Wechselwirkungsterm beschrieben. Der nicht lokale Austauschterm wurde im Rahmen dieser Rechnung vernachlässigt. Die Lösung der Gleichung zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Zunächst erlauben die Rechnungen keine eindeutige Identifizierung eines nichtsequentiellen Ionisationsmechanismus. Jedoch läßt sich durch die Benutzung eines in einem Abstand von (10-20) a.u. vom Kern befindlichen absorbierenden Potentials eine Rückkehr des Wellenpaketes des äußeren Elektrons unterdrücken. Dabei zeigt sich eine drastische Verringerung der Rate für die nichtsequentielle Ionisation. Dies bedeutet, daß das innere Elektron erst nach der Rückkehr des äußeren Elektrons freigesetzt wird, also daß „Rescattering“ Prozeß der nichtsequentielle Ionisationsmechanismus ist.

Im Gegensatz zu Watson et al. [52] wurden von Sheehy quasiklassische Rechnungen durchgeführt. In diesem Bild wird das erste Elektron durch Tunnelionisation freigesetzt und kann für bestimmte Startphasen im Feld zum Ion zurückkehren. Durch die Berechnung der kinetischen Energie zum Rückkehrzeitpunkt und der Annahme eines inelastischen e-2e Stoßes lassen sich Ionisationsraten berechnen. Es zeigt sich, daß in diesem „simplen“ Modell die berechnete He^{2+} Ionenausbeute verglichen mit den experimentellen Daten zu klein ist.

In einer neuen, komplexeren Rechnung von Ivanov et al. [44], welcher der „Rescattering“ Mechanismus zugrunde liegt, zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen totalen Ionenausbeuten. Genauere Details zu dieser Rechnung sind jedoch im Moment leider noch nicht verfügbar.

- **Empirische Formel** Im Zusammenhang mit dem CTI Modell wurde eine Formel zur Berechnung der nichtsequentiellen Ionisationsrate in starken Laserfeldern gefunden [39]. Bei dieser Formel handelt es sich um eine empirisch modifizierte Tunnelformel, die sehr erfolgreich in der Beschreibung experimenteller Ergebnisse ist.

Die vorgestellten Modelle und theoretischen Ansätze zur Erklärung der nichtsequentiellen Ionisation sind zum Teil nicht miteinander vereinbar. Die bisher vorliegenden Experimente lassen jedoch keine endgültigen Aussagen über die Gültigkeit der verschiedenen Modelle zu.

2.4. Dissoziationsmechanismen

2.4.1. H_2/D_2 in intensiven Lichtfeldern

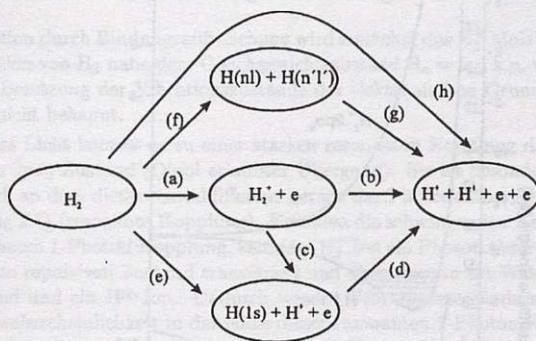
Die Wechselwirkung von Molekülen mit intensiven ultrakurzen Lichtpulsen ermöglicht die zeitaufgelöste Untersuchung von molekularen Zerfallsprozessen. Ziel dieser Forschung ist es, die Dynamik der Ionisation und Dissoziation zu untersuchen und mit theoretischen Modellen zu beschreiben. Dadurch eröffnet sich unter Umständen die Möglichkeit der gezielten Steuerung von molekularen Prozessen, auch bekannt unter dem Stichwort Femtochemie. Eine Einflußnahme auf die Dynamik läßt sich durch die Dauer, die Wellenlänge, den Chirp und die Form der Lichtpulse realisieren [53, 54]. Weiter können durch das hohe elektrische Feld der Lichtwelle die Potentiale des Moleküls so verändert werden, daß sich im Lichtfeld neue Zustände des Moleküls bilden. Ein Beispiel hierfür sind die lichtinduzierten gebunden Zustände⁸ [55, 56, 57, 58].

Das einfachste neutrale molekulare System ist das Wasserstoffmolekül H_2 . Es eignet sich daher als Modellsystem für Untersuchungen. Um den Einfluß der Kernmasse auf die Dynamik zu testen, wird auch das Wasserstoffisotop Deuterium D_2 benutzt. Die beiden Moleküle, H_2 und D_2 , verfügen über die gleichen elektronischen Eigenschaften.

Zerfallskanäle

Selbst bei dem einfachsten neutralen Molekül H_2/D_2 ist nach der Anregung in einem intensiven Lichtpuls eine große Anzahl von Zerfallsmechanismen möglich. Die prinzipiell möglichen Fragmentationswege sind in Abbildung 2.5 dargestellt.

- (a) Multiphotonenionisation von H_2 .
- (b) Multiphotonenionisation von H_2^+ und anschließende Coulomb-Explosion der beiden Protonen.
- (c) Dissoziation von H_2^+ in ein Proton und ein Wasserstoff Atom im Grundzustand.
- (d) Multiphotonenionisation des neutralen Wasserstoffatoms.
- (e) Dissoziative Ionisation von H_2 . Direkte Kombination der Wege (a) und (c).
- (f) Neutralsdissoziation von H_2 in möglicherweise angeregte atomare Fragmente.
- (g) Multiphotonenionisation des angeregten oder neutralen Wasserstoffatoms.
- (h) Direkte Doppelionisation von H_2 aus dem Grundzustand mit anschließender Coulomb-Explosion der verbleibenden Protonen.

Abbildung 2.5.: Zerfallskanäle nach der Multiphotonenanregung von H_2

Die verschiedenen Ionisations- und Dissoziationswege werden durch die Potentialkurven der elektronischen Zustände von H_2 und H_2^+ festgelegt. Abbildung 2.6 zeigt eine Auswahl der vom Kernabstand R abhängigen Potentialkurven des ungestörten molekularen Wasserstoffs und des Moleküliums H_2^+ . Zur besseren Übersicht wurden neben dem ersten elektronisch angeregten Zustand $B^1\Sigma_u^+$ von H_2 die für die experimentell beobachteten Prozesse relevanten Zustände und einige zugehörige Vibrationsniveaus eingezeichnet.

Am Nullpunkt der potentiellen Energie sind alle Kerne und Elektronen des Wasserstoffs unendlich weit voneinander entfernt. An der linken Ordinate ist die Energie im Molekül nach der Absorption von n Photonen (Photonenenergie $\hbar\omega = 1,57$ eV (Wellenlänge: 790 nm)) aufgetragen.

Im thermischen Gleichgewicht ist nur der eingezeichnete Vibrationsgrundzustand im elektronischen Grundzustand $X^1\Sigma_g^+$ besetzt.

Alle in dieser Arbeit beobachteten Dissoziationsprozesse erfolgen nach der Anregung von H_2/D_2 mit Lichtpulsen, die eine Pulsdauer < 100 fs und eine Spitzenintensität im Bereich zwischen $I = 10^{14}$ W/cm² und $I = 3 \times 10^{15}$ W/cm² haben. Zur Anregung von H_2/D_2 mit Laserpulsen, die andere Parametern insbesondere eine andere Wellenlänge haben, sei an dieser Stelle auf die Literatur verwiesen (u. a. [59, 9, 60, 61, 62, 63]).

Die Bildung von geladenen Dissoziationsfragmenten von H_2/D_2 durch die Anregung im infraroten Spektralbereich erfolgt nach der Photoionisation von H_2 (Weg (a) in Ab-

⁸ „Light induced bound states (LIBS)“

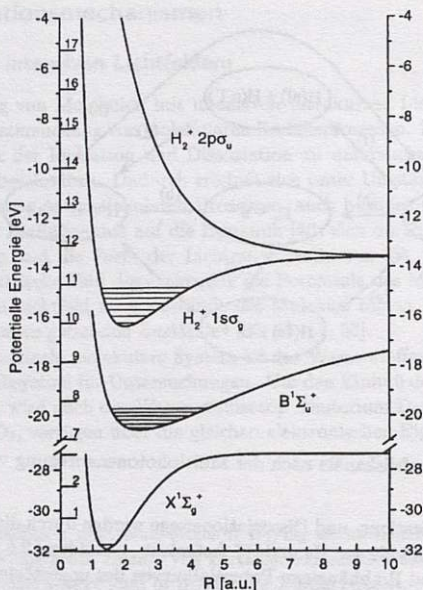


Abbildung 2.6.: Darstellung einiger ausgewählter Potentialkurven von H_2 und H_2^+ nach [2]

bildung 2.5) und einer sich daran anschließenden Dissoziation von H_2^+ [64, 65, 66, 8, 67]:



Die Dissoziation erfolgt auf den Potentialkurven der elektrischen Zustände $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ des H_2^+ Ions. Die Charakteristika der Dissoziation werden durch die Dipolkopplung der beiden elektronischen Zustände ($\langle 1s\sigma_g | \vec{r}_e | 2p\sigma_u \rangle \neq 0$) in der Lichtwelle bestimmt. Die zwei im Folgenden vorgestellten grundlegenden Dissoziationsmechanismen sind:

1. Dissoziation durch Bindungsaufweichung
2. Coulomb-Explosion

2.4.2. Dissoziation durch Bindungsaufweichung

Bei Dissoziation durch Bindungsaufweichung wird zunächst das H_2^+ Molekülion durch die Photoionisation von H_2 nahe dem Gleichgewichtsabstand $R_e = 1,4$ a.u. von H_2 gebildet. Die genaue Besetzung der Vibrationszustände des elektronischen Grundzustandes $1s\sigma_g$ von H_2^+ ist nicht bekannt.

Durch das Licht kommt es zu einer starken resonanten Kopplung des $1s\sigma_g$ Zustandes mit dem $2p\sigma_u$ Zustand (Dipol erlaubter Übergang). Sie ist besonders groß für den Kernabstand, an dem die Potentialdifferenz gerade der Photonenenergie entspricht (siehe Abbildung 2.7) (resonante Kopplung). Kommen die schwingenden Kerne in die Nähe dieser resonanten 1-Photon Kopplung, kann das H_2^+ Ion ein Photon absorbieren und wird damit auf den repulsiven Zustand transferiert und dissoziiert in ein Wasserstoffatom im Grundzustand und ein H^+ Ion. Dadurch werden Vibrationszustände mit einer hohen Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe dieser resonanten 1-Photon Kopplung in den $2p\sigma_u$ Zustand angeregt. Neben der resonanten 1-Photon Kopplung wird bei höheren Lichtintensitäten die resonante 3-Photonen Kopplung signifikant (Bemerkung: Die Anzahl der absorbierten/emittierten Photonen muß aufgrund der Auswahlregeln immer ungeradzahlig sein.), die zu einer Dissoziation von gebundenen Vibrationszuständen mit kleineren Vibrationsquantenzahlen führt.

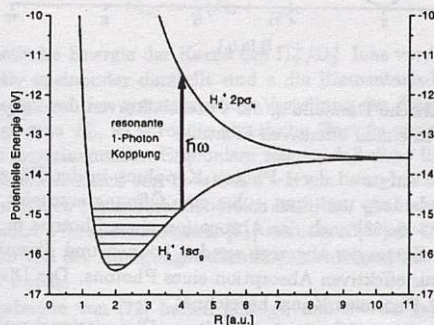


Abbildung 2.7.: Schematische Darstellung der resonanten 1-Photonen Kopplung zwischen dem $1s\sigma_g$ Zustand und dem $2p\sigma_u$ Zustand

Die oben beschriebene Dissoziation läßt sich insbesondere bei hohen Lichtintensitäten auch in einem adiabatischen Bild erklären und wird als Dissoziation durch Bindungsaufweichung [64] bezeichnet. Die genaue Herleitung ist Anhang A beschrieben. Das Resultat dieser Rechnung ist schematisch in Abbildung 2.8 gezeigt.

In Abbildung 2.8 sind die für die Dissoziation relevanten bekleideten Zustände⁹ $1s\sigma_g$, $2p\sigma_u$, $1s\sigma_g - 2\hbar\omega$, $2p\sigma_u - \hbar\omega$ und $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$ (gestrichelte Linien) und die sich daraus ergebenden adiabatischen Potentiale (durchgezogene Linie) im externen intensiven Lichtfeld gezeigt. Vermiedene Kreuzungen entstehen für die adiabatischen Potentiale an den Kreuzungspunkten der bekleideten Zustände für die eine Dipolkopplung besteht.

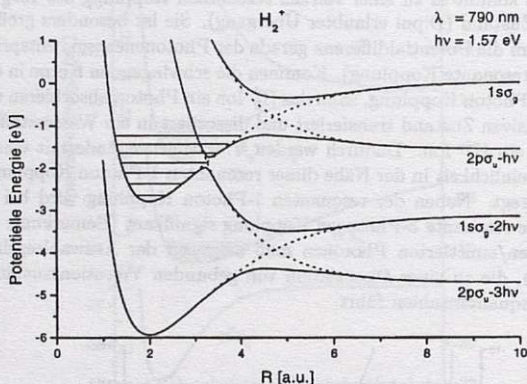


Abbildung 2.8.: Schematische Darstellung der Potentialkurven des $1s\sigma_g$ - und $2p\sigma_u$ Zustandes in einem intensiven Lichtfeld

Dabei zeigt sich, daß aufgrund der 1-Photon Kopplung in der Nähe der Kreuzung der diabatischen Zustände $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u - \hbar\omega$ eine Öffnung erscheint und damit Vibrationszustände mit $v > 6$ [68] nach der Absorption eines Photons in das Dissoziationskontinuum des $2p\sigma_u$ Zustandes angeregt werden können und dissoziieren. Bei der Dissoziation kommt es zur effektiven Absorption eines Photons. Der Dissoziationskanal wird daher als Floquet 1-Photonen Kanal bezeichnet.

Für höhere Lichtintensitäten öffnet sich ein weiterer Dissoziationskanal. Es kommt zu einer Anregung durch 3-Photonen Absorption in das Dissoziationskontinuum des $2p\sigma_u$ Zustandes in der Nähe der Kreuzung der diabatischen Zustände $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$. Durch diesen Kanal können dann Vibrationszustände mit einer kleinen Vibrationsquantenzahlen dissoziieren [64, 65, 66, 69].

Während der Dissoziation bleibt das Molekül wie sich im Experiment zeigt auf dem adiabatischen Potential, das die $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$ mit der $1s\sigma_g - 2\hbar\omega$ Kurve bei großen Kern-

⁹dressed states

abständen verbindet. Das ist gleichbedeutend mit der stimulierten Emission eines Photons im diabatischen Bild. Der Grund hierfür ist die große Energielücke, die durch die starke 1-Photon Kopplung der $1s\sigma_g - 2\hbar\omega$ und $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$ diabatischen Zustände im intensiven Lichtfeld entsteht. Das heißt, es handelt sich eigentlich um eine effektive 2-Photonen Dissoziation. In der Literatur wird dieser Kanal als Floquet 2-Photonen Kanal bezeichnet, die durch eine 3-Photonen Absorption bei kleinen Kernabständen eingeleitet wird. Der häufig in der Literatur benutzte Begriff „Dissoziation über die Schwelle“¹⁰ ist streng genommen nicht korrekt für diesen Prozeß.

2.4.3. Coulomb-Explosion

Betrachtet man die Verteilung der kinetischen Energien der geladenen Dissoziationsfragmente nach der Wechselwirkung von H_2/D_2 mit intensiver Lichtstrahlung (siehe Kapitel 4), so zeigt sich in den experimentellen Daten eine breite Verteilung von Ionen mit einer vergleichsweise hohen kinetischen Energie [70]. Die Ionen mit dieser kinetischen Energie entstehen aus der Dissoziation durch Coulomb-Explosion nach der Photoionisation von H_2^+/D_2^+ . Die kinetische Energie dieser Ionen hängt eng mit dem Abstand R der Kerne zum Zeitpunkt der Photoionisation des Moleküls zusammen:

$$E_{kin} = \frac{1}{2} \left(E_0 + \frac{e^2}{R} \right), \quad (2.27)$$

wobei E_0 die kinetische Energie der Kerne des H_2^+/D_2^+ Ions vor/zum Zeitpunkt der Photoionisation relativ zueinander darstellt und e die Elementarladung ist. Der Faktor $1/2$ ergibt sich aufgrund der symmetrischen Verteilung der Energie auf die beiden Kerne. Vernachlässigt man E_0 , so wird die kinetische Energie nur durch den Kernabstand bestimmt. Die experimentellen Ergebnisse zeigen, daß diese Ionen bevorzugt aus einem engen Kernabstandsbereich von $R \approx 6 \text{ a.u.} - 8 \text{ a.u.}$ stammen. Die Lokalisierung dieser Ionen in diesem engen Kernabstandsbereich ist nicht, wie zunächst vermutet, auf lichtinduzierte gebunden Vibrationszustände [71] zurückzuführen. Dieser Mechanismus sollte sehr empfindlich von der Anregungswellenlänge abhängen, was jedoch experimentell nicht beobachtet wurde.

Theoretische Ergebnisse von [72] haben gezeigt, daß die bei bestimmten Kernabständen bevorzugt auftretenden Photoionisation von H_2^+ durch die elektrische Feldionisation im quasistatischen Regime unter der Voraussetzung der Lokalisierung des verbleibenden Elektrons an einem der beiden Kerne verstanden werden kann. Die Lokalisierung an einem der beiden Kerne tritt nur oberhalb eines minimalen Kernabstandes auf.

In Abbildung 2.9 ist das Prinzip dieses Ionisationsmechanismus dargestellt. Abbildung 2.9a zeigt das Wechselwirkungspotential des H_2^+ Elektrons mit den beiden Kernen für verschiedene Kernabstände entlang der Kernverbindungsachse. In Abbildung 2.9b-d

¹⁰im Englischen: Above Treshold Dissoziation (ATD)

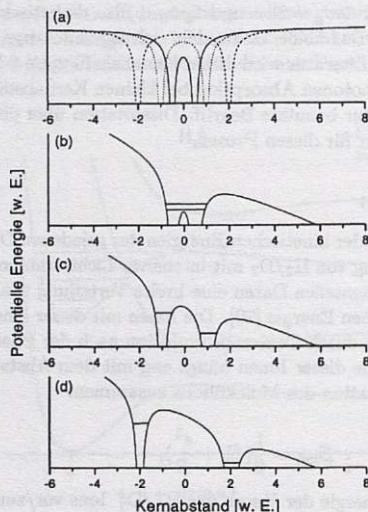


Abbildung 2.9.: (a) Wechselwirkungspotential des H_2^+ Elektrons mit den beiden Kernen entlang der Kernverbindungsachse, aufgetragen für verschiedene Kernabstände. (b)-(d) Wechselwirkungspotentiale, die aus dem Coulomb-Feld der beiden Kerne und einem statischen elektrischen Feld gebildet werden (näheres siehe Text).

sind diese Potentiale, modifiziert durch ein äußeres elektrisches Feld¹¹, zusammen mit den Energieniveaus von zwei elektrischen Zuständen eingezeichnet ($1s\sigma_g$, $2p\sigma_u$ des H_2^+).

Bei kleinen Kernabständen (Abbildung 2.9b) kommt es zu keiner Lokalisierung des Elektrons an einem der Kerne. Für eine Ionisation des Systems muß das Elektron durch die äußere Potentialbarriere tunnelt. Die Ionisationswahrscheinlichkeit ist vergleichbar mit der eines atomaren Systems. Vergrößert sich jedoch der Kernabstand, wie in Abbildung 2.9c gezeigt, so kann das in der linken Potentialmulde lokalisierte Elektron bereits nach dem Tunnelt durch die innere Barriere freigesetzt werden. Diese innere Barriere

¹¹elektrisches Feld der Lichtwelle zu einem willkürlichen Zeitpunkt t

ist wesentlich kleiner als die äußere Barriere in Abbildung 2.9b. Dies hat eine höhere Ionisationsrate im Fall von Abbildung 2.9c zur Folge. Vergrößert sich der Kernabstand weiter, so verbreitert sich die innere Barriere und der Tunnelprozeß wird wieder unwahrscheinlicher (siehe Abbildung 2.9d).

Damit zeigt sich, daß es in einem engen Kernabstandsbereich zu einer Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit kommt. Dieser Mechanismus wird als ladungsresonante Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit¹² bezeichnet und ist auch für andere zweiatomige Moleküle mit einer ungeraden Anzahl von Elektronen beobachtet worden [73]. Der Kernabstandsbereich für H_2^+ liegt im Bereich von 4 a.u. – 8 a.u. [72, 74].

¹²Charge Resonant Enhanced Ionization CREI

3. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von H_2/D_2

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Experiment zur Untersuchung der Dissoziations- und Ionisationsdynamik von Molekülen aufgebaut. Ziel des Aufbaus war die Verteilung der kinetischen Energie der geladenen Dissoziationsfragmente H^+/D^+ mit einer hohen Auflösung zu messen. In allen vorangegangenen Experimenten (u. a. [75, 68, 76, 77, 60]) war die Auflösung durch die thermische Verteilung der kinetischen Energie (Boltzmann Verteilung, $T=300$ K) der Ausgangsmoleküle stark eingeschränkt (näheres siehe Abschnitt 3.5). Daher war es das Ziel, die Breite der Verteilung der kinetischen Energie der Ausgangsmoleküle durch die Verwendung eines durch Überschallexpansion gekühlten Molekularstrahls zu reduzieren und damit das Auflösungsvermögen zu verbessern.

Der experimentelle Aufbau besteht im Wesentlichen aus drei Teilen: einer Düsenstrahlkammer, einer differentiellen Pumpstufe und der Wechselwirkungskammer (siehe Abbildung 3.1). In der Düsenstrahlkammer wird zunächst der Molekularstrahl erzeugt, der anschließend in der differentiellen Pumpstufe durch eine Anordnung von Blenden kollimiert wird, bevor er in die Wechselwirkungskammer gelangt. Dort findet eine Anregung des Molekularstrahls mit Hilfe eines oder mehrerer Laserpulse statt. Die Verteilung der kinetischen Energie der entstehenden Photoionen wird mit Hilfe eines Flugzeitspektrometers gemessen.

3.1. Düsenstrahlkammer

Die Düsenstrahlkammer besteht aus einer Hochvakuumkammer mit einem Durchmesser von 0.5 m. In der Mitte der Kammer befindet sich die beweglich montierte Düse (2 Translationsfreiheitsgrade senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Strahls und 2 Kippwinkel). Die Düse arbeitet in einem gepulsten Betrieb. Die Kammer wird von einer Diffusionspumpe mit einem Saugvermögen von 3000 l/s für H_2 gepumpt. Der Druck aufgrund des Restgases in der Kammer liegt bei 3×10^{-8} mbar und erhöht sich auf 1×10^{-5} mbar, wenn die Düse in Betrieb ist. In einem Abstand von ca. 200 mm befindet sich ein Skimmer, der zugleich den Übergang zur differentiellen Pumpstufe bildet.

In der Düsenstrahlkammer wird zunächst ein gepulster kalter Düsenstrahl durch Überschallexpansion erzeugt. Die Öffnung der Düse beträgt 0,1 mm. Sie wird piezoelek-

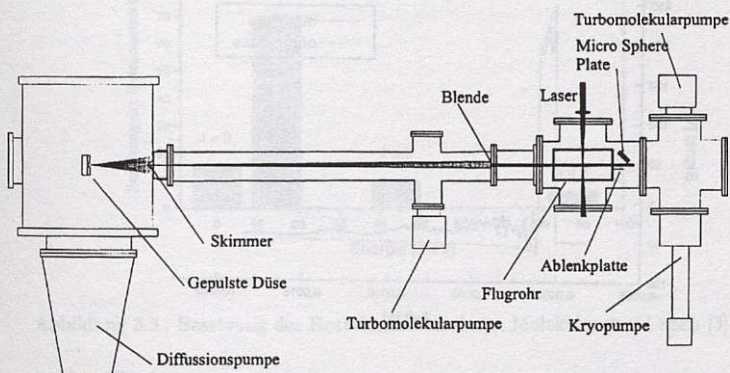


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur Untersuchung von H_2/D_2

trisch betrieben. Die Piezodüse wurde in der Arbeitsgruppe von D. Gerlich (Universität Freiburg) entworfen und am Max-Born-Institut in der Gruppe von Prof. Radloff weiterentwickelt. Der elektrische Ansteuerpuls hat eine Dauer von $\approx 200 \mu s$. Abbildung 3.2 zeigt den zeitlichen Verlauf des elektrischen Pulses mit und ohne Piezolast. Die bei Piezolast mit einer leichten Schwingung modulierte Kurve zeigt die Resonanzfrequenz des Piezoelements.

Durch die adiabatische Überschallexpansion ist es möglich, die Translationsfreiheitsgrade in Richtung der Molekularstrahlachse zu kühlen. Alle Moleküle besitzen nach der Expansion in Richtung der Ausbreitung nahezu die gleiche Geschwindigkeit (mittlere Geschwindigkeit). Die Breite der Verteilung der Geschwindigkeit um die mittlere Geschwindigkeit ist wesentlich geringer im Vergleich zu einer thermischen Geschwindigkeitsverteilung bei Raumtemperatur und ermöglicht so eine bessere Auflösung bei der Messung der Verteilung der kinetischen Energie der Dissoziationsfragmente. Zudem werden die inneren Freiheitsgrade (Rotations- und Vibrationsfreiheitsgrade) gekühlt. Die Kühlung der Freiheitsgrade hängt vom Molekül selbst, der Anfangstemperatur des Ga-

3. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von H_2/D_2

ses, der Düsenöffnung und dem Vordruck vor der Düse ab.

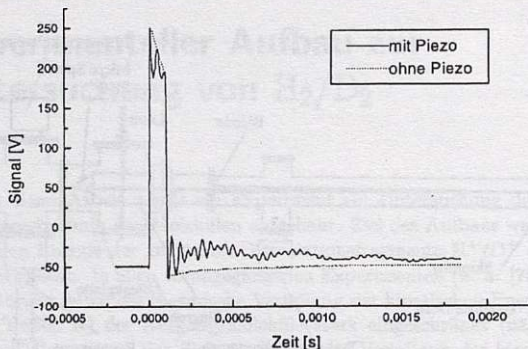


Abbildung 3.2.: Zeitlicher Verlauf des elektronischen Ansteuerpulses an der Piezodüse

Der Vordruck kann in einem Bereich von 1 bis 5 bar variiert werden. Die mittlere Geschwindigkeit des H_2 Molekularstrahls beträgt $v = 2,5 \times 10^3$ m/s und ist in guter Übereinstimmung mit dem theoretisch erwarteten Wert [78]. Das Geschwindigkeitsverhältnis¹ für den Molekularstrahl ist für die hier benutzten Expansionsbedingungen besser als 20 [78]. Das Geschwindigkeitsverhältnis ist das Verhältnis der mittleren Geschwindigkeit zur Breite der Geschwindigkeitsverteilung im Molekularstrahl. Dies entspricht einer Relativgeschwindigkeit um die mittlere Geschwindigkeit von ± 45 m/s entlang der Strahlachse. Die „Kühlung“ (Begrenzung der Geschwindigkeiten) senkrecht zur Strahlachse erfolgt durch Blenden. Die maximale Geschwindigkeit senkrecht zur Ausbreitungsrichtung beträgt aufgrund der geometrischen Anordnung 5 m/s.

Der sehr guten Kühlung der Translationsfreiheitsgrade steht nur eine mäßige Kühlung der Rotationsfreiheitsgrade gegenüber. Abbildung 3.3 zeigt nach Pollard et al. [3] die unter vergleichbaren Expansionsbedingungen gemessene Besetzung der Rotationszustände von H_2 .

Man sieht, daß der Zustand mit Drehimpuls $J=1$ mit ca. 70 % am stärksten besetzt ist. Die übrigen 30 % verteilen sich auf die Zustände mit $J = 0, 2$ und 3. Die schlechte Kühlung läßt sich auf die großen Energieabstände zwischen den Rotationsniveaus des H_2 Moleküls und auf die Tatsache zurückführen, daß keine Übergänge zwischen *ortho*- und *para*- Wasserstoff und umgekehrt möglich sind.

¹im engl. Sprachgebrauch: speed ratio

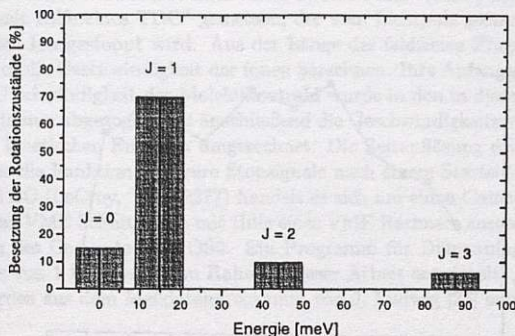


Abbildung 3.3.: Besetzung der Rotationszustände im Molekularstrahl nach [3]

Abbildung 3.4 zeigt die H^+ Ionenausbeute in Abhängigkeit vom Düsenvordruck P_0 . Man sieht, daß für niedrige Vordrücke von (1-2) bar die Ionenausbeute mit dem Vordruck, wie theoretisch erwartet, linear ansteigt. Danach bleibt in einem Bereich von ca. (2-5) bar die Ausbeute konstant und nimmt dann deutlich ab. Dieses Verhalten ist hauptsächlich auf Streuung des Strahls am Restgas zurückzuführen, die bei ansteigendem Vordruck zunimmt. Der Wirkungsquerschnitt für $H_2 - H_2$ Stöße beträgt $\approx 2,4 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$. Bei einem Restdruck von ca. $1 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ kommt es zu einer Abschwächung des Molekularstrahls um ca. 10 % auf dem Weg von der Düsenöffnung zum Skimmer. Ein weiterer Grund für die begrenzte Strahlintensität ist der Umstand, daß die Piezodüse bei höherem Vordruck nicht mehr vollständig öffnet und sich so der Durchfluß an Gas verringert.

3.2. Differentielle Pumpstufe

Die differentielle Pumpstufe wird mit einer Turbopumpe (Saugvermögen 220 l/s für H_2) gepumpt. Die Länge der differentiellen Pumpstufe beträgt $\approx 1250 \text{ mm}$. Während des Betriebs der Düse beträgt der mittlere Druck $\approx 10^{-7} \text{ mbar}$. Die Länge der Stufe ist so gewählt, daß man am Wechselwirkungsort einen Molekularstrahl mit hinreichend geringer Dichte hat (die Abnahme der Dichte ist $\propto 1/r^2$). Die Einstellung der Dichte am Wechselwirkungsort über den Vordruck der Düse hätte den Nachteil, daß sich durch die Veränderung der Expansionsbedingungen die Kühleigenschaften verändern und damit die Energieauflösung verändert wird.

3. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von H_2/D_2

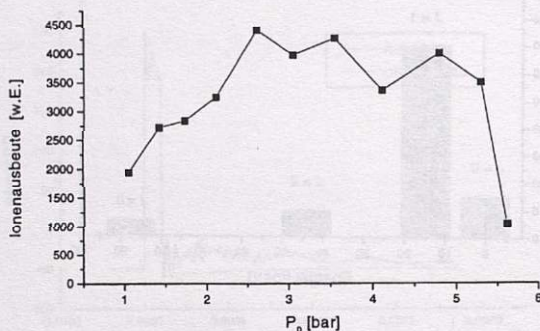


Abbildung 3.4.: Ionenausbeute am Wechselwirkungsort in Abhängigkeit vom Vordruck P_0 der Düse

Am Ende der differentiellen Pumpstufe wird der Molekularstrahl nochmals durch eine Apertur ausgeblendet. Man erhält damit einen nahezu parallelen Molekularstrahl mit geringer Dichte. Die Dichte am Wechselwirkungsort beträgt $(10^8 - 10^9)$ Teilchen/cm³. Dies entspricht einem statischen Druck von ca. 10^{-8} mbar.

3.3. Wechselwirkungskammer

Der Restgasdruck in der UHV-Kammer beträgt $\approx 7 \times 10^{-10}$ mbar. Es läßt sich kein Druckanstieg bei Betrieb der Düse messen. Die UHV-Kammer wird mit einer Kryopumpe gepumpt. Das Saugvermögen der Pumpe beträgt 2000 l/s für H_2 . In der Wechselwirkungskammer tritt der Molekularstrahl in die Flugröhre des Ionenflugzeitspektrometers ein. In der Mitte der Flugröhre wird der Molekularstrahl von einem Laserstrahl (Ausbreitungsrichtung des Lasers ist senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Molekularstrahls) gekreuzt. Die Ionen werden nachgewiesen, die im Laserfeld erzeugt und in einen kleinen Raumwinkel um die Achse des Molekularstrahls emittiert werden. Die gesamte Flugstrecke ist feldfrei und hat eine Länge von 105 mm. Die Wahl einer feldfreien Flugstrecke hat den Vorteil, daß Beschleunigungseffekte durch schwer kontrollierbare inhomogene Feldverteilungen entfallen und somit das Auflösungsvermögen nicht negativ

beeinflussen. Die Ionen werden mit einer Micro-Sphere-Plate² (MSP) nachgewiesen. Die Flugzeit wird mit Hilfe eines TDC³ gemessen, der vom Lichtpuls gestartet und von einem detektierten Ion gestoppt wird. Aus der Länge der feldfreien Flugstrecke und der Flugzeit läßt sich die Geschwindigkeit der Ionen berechnen. Ihre Anfangsgeschwindigkeit aufgrund der Geschwindigkeit des Molekularstrahl wurde in den in dieser Arbeit dargestellten Daten immer abgezogen und anschließend die Geschwindigkeitsverteilung in eine Verteilung der kinetischen Energien umgerechnet. Die Zeitauflösung des TDCs beträgt 1 ns. Er besitzt die Funktion, mehrere Stoppsignale nach einem Startsignal zu verarbeiten. Bei dem TDC (LeCroy, TDC 2277) handelt es sich um einen Camac Einschub, der über eine Camac-VME Schnittstelle mit Hilfe eines VME Rechners ausgelesen wird. Das Betriebssystem des Computers ist OS9. Ein Programm für Datenaufnahme mit einer Repetitionsrate von 1 kHz wurde im Rahmen dieser Arbeit entwickelt. Teile für dieses Programm wurden aus dem Meßdatenprogramm von J. Ludwig [27] entnommen.

3.4. Modifikationen an der Kammer

Der oben beschriebene Aufbau wurde für die Untersuchungen der Licht-Molekül-Wechselwirkung an einem Lasersystem mit einer Repetitionsrate von 10 Hz entwickelt. Die maximale Repetitionsrate der Piezodüse, die in diesem Experiment möglich ist, beträgt ca. 50 Hz, da sonst der Gasanfall in der Düsenkammer für die Diffusionspumpe zu groß wird. Im Verlauf der Arbeit mußte die Apparatur modifiziert werden, um den Anforderungen eines Lasersystems mit einer Repetitionsrate von 1 kHz zu entsprechen. Die zwei wesentlichen Änderungen waren:

- Verwendung einer kontinuierlich arbeitenden Düse anstatt einer gepulsten.
- Verkürzung der differentiellen Pumpstufe.

Die Verwendung einer kontinuierlichen Düse mit einem kleineren Düsendurchmesser war notwendig, um den Gasballast zu verringern. Die kontinuierliche Düse hat eine Öffnung mit einem Durchmesser von 10 μm . Durch die Verkleinerung des Durchmessers der Düse und der damit verbundenen Verringerung des Gasdurchsatzes, musste für eine gleichbleibende Teilchendichte am Wechselwirkungsort die differentielle Pumpstufe verkürzt werden. Aufgrund des Umbaus konnte keine Veränderung im Auflösungsvermögen für die kinetischen Energie der Dissoziationsprodukten beobachtet werden.

²Die Wirkungsweise ist ähnlich der von Mikrokanalplatten

³Time to Digital Converter

3.5. Energieauflösung

Die Energieauflösung spielt bei der Interpretation der Ergebnisse eine wesentliche Rolle. Es zeigte sich, daß die thermische Energieverteilung der Ausgangsmoleküle eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielt. Die Wahrscheinlichkeit ein Ion mit kinetischer Energie im Bereich E und $E+dE$ zu messen, ist von der Temperatur des Gases abhängig und wie folgt gegeben [79, 80]:

$$W(E) = \frac{1 - \exp\left[-\frac{ME}{m k T} \tan^2(\Theta)\right]}{\sqrt{\frac{E}{k T}}} \exp\left[-\frac{M}{m} \left(\sqrt{\frac{E}{k T}} - \sqrt{\frac{E_D}{k T}}\right)^2\right], \quad (3.1)$$

wobei k die Boltzmannkonstante, T die Temperatur des Gases, E_D die Dissoziationsenergie im Schwerpunktsystem des Moleküls, m die Masse des Fragments, M die Masse des Ausgangsmoleküls, 2Θ der Öffnungswinkel und E die nachgewiesene Energie längs der Detektorachse im Laborsystem ist. Es zeigt sich, daß die Linienbreite besonders ungünstig (breit) ist, wenn $m = \frac{M}{2}$.

Für $E_D \gg kT$ und $m = \frac{M}{2}$ ergibt sich für die Wahrscheinlichkeitsverteilung $W(E)$ eine Linienbreite (FWHM) von

$$\Delta E = 4kT \sqrt{\ln 2 \frac{E_D}{2kT}}. \quad (3.2)$$

Abbildung 3.5 zeigt die Wahrscheinlichkeitsverteilung der gemessenen Energie am Detektor nach Gleichung 3.1 für ein Ion mit einer Dissoziationsenergie von $E_D = 0.5$ eV, $m = \frac{M}{2}$, $T=300$ K und $2\Theta = 5^\circ$. Die Breite der Verteilung ist für diesen Fall 230 meV. Dies zeigt deutlich, daß die thermische Energieverteilung des Gases die Energieauflösung immens beeinflusst.

In Abbildung 3.6 wurde ein Modell-Spektrum (gestrichelte Kurve) mit der thermischen Verbreiterung nach Gleichung 3.1 gefaltet. Das Spektrum (durchgezogene Kurve) zeigt deutlich die Verbreiterung durch die thermische Energieverteilung der Ausgangsmoleküle, zum Beispiel verschwindet das dritte Maximum fast ganz in den benachbarten Maxima.

Diese Verbreiterung läßt sich auch im Experiment messen. In Abbildung 3.7 wurde bei gleicher Laserintensität die kinetische Energieverteilung der H^+ Ionen an einem thermischen Gas und an einem durch Überschallexpansion gekühlten Molekularstrahl gemessen. Man sieht deutlich die Zunahme der Linienbreite für die Linie mit dem Maximum bei 0.5 eV. Für das thermische Gas erhält man eine Linienbreite von 320 meV, für den Molekularstrahl lediglich eine Linienbreite von 150 meV.

Bei der quantitativen Interpretation der Daten muß beachtet werden, daß für die hier gewählte Geometrie des Spektrometers der nachgewiesene Raumwinkel eine Funktion der Energie der Ionen ist (siehe Abbildung 3.8). Der Grund hierfür ist die Tatsache,

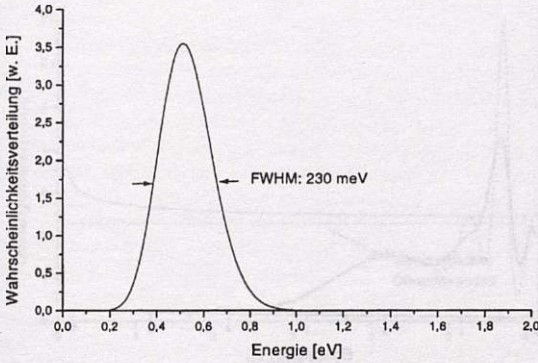


Abbildung 3.5.: Wahrscheinlichkeitsverteilung der gemessenen Energie nach Gleichung 3.1 für eine Ion mit $E_D = 0.5$ eV, $m = \frac{M}{2}$, $T = 300$ K und $2\Theta = 5^\circ$

daß die Ionen über eine Anfangsgeschwindigkeit (Strahlgeschwindigkeit) verfügen. Die Anfangsgeschwindigkeit der H_2 Moleküle im Strahl beträgt 2470 m/s und ist zum Detektor hin gerichtet. Dadurch werden vor allem Ionen mit kleinen Dissoziationsenergien mit einem größeren Raumwinkel nachgewiesen. Die in Abbildung 3.7 gezeigten Daten wurden daher auf einen konstanten Raumwinkel korrigiert. Abbildung 3.9 zeigt korrigierte und unkorrigierte Daten. Man sieht deutlich die Veränderung der relativen Höhen der einzelnen Linien.

Simulationen mit dem Programm SIMION 3D Version 6.0 zeigen, daß die Energieauflösung durch die Geometrie des Spektrometeraufbaus begrenzt ist und $\Delta E/E \leq 0.05$ für Ionen mit einer kinetischen Energie von $E < 10$ eV beträgt.

3. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von H_2/D_2

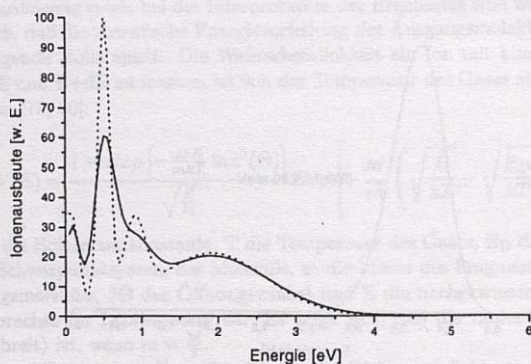


Abbildung 3.6.: Thermische Verbreiterung eines Modellspektrums

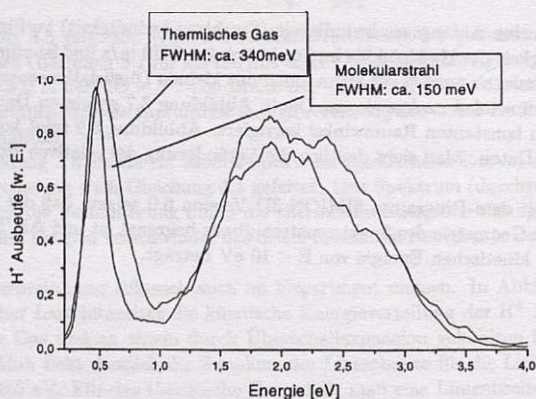


Abbildung 3.7.: Verteilung der kinetischen Energie der H^+ Ionen aus einem thermischen Gas und einem Molekularstrahl

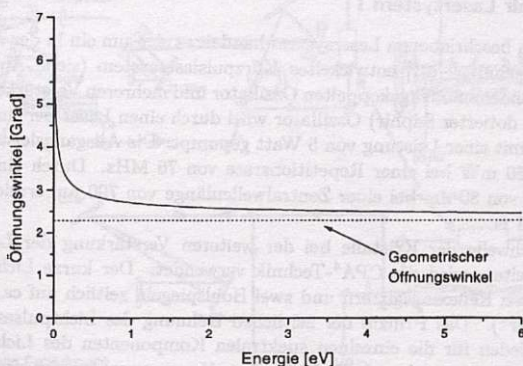
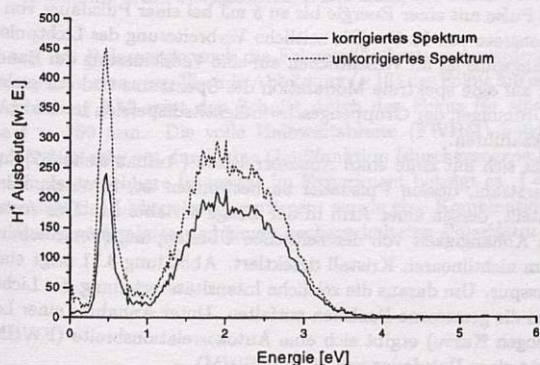


Abbildung 3.8.: Öffnungswinkel in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Ionen

Abbildung 3.9.: Verteilung der kinetischen Energie der H⁺ Ionen mit und ohne Öffnungswinkelkorrektur

3.6. Lasersysteme

3.6.1. Titan-Saphir Lasersystem I

Bei dem im Folgenden beschriebenen Lasersystem handelt es sich um ein in der Arbeitsgruppe von Dr. Kalashnikov [81] entwickeltes Kurzpulslasersystem (siehe Abbildung 3.10). Es besteht aus einem modengekoppelten Oszillator und mehreren Verstärkerstufen. Der Ti:Sa (mit Titan dotierter Saphir) Oszillator wird durch einen Laser bei einer Wellenlänge von 532 nm mit einer Leistung von 5 Watt gepumpt. Die Ausgangsleistung des Oszillators beträgt 160 mW bei einer Repetitionsrate von 76 MHz. Durch eine große spektrale Bandbreite von 80 nm bei einer Zentralwellenlänge von 790 nm erreicht man eine Pulsdauer von 11 fs.

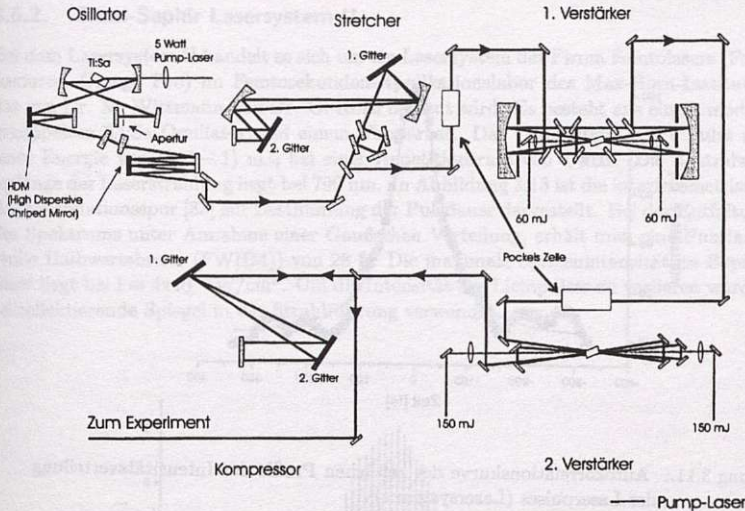
Um die Zerstörschwelle der Kristalle bei der weiteren Verstärkung der Laserpulse nicht zu überschreiten, wird die CPA⁴-Technik verwendet. Der kurze Lichtimpuls wird mit Hilfe von zwei Reflexionsgittern und zwei Hohlspiegeln zeitlich auf ca. 700 ps verbreitert („Stretcher“). Das Prinzip der zeitlichen Dehnung des Lichtpulses beruht auf Laufzeitunterschieden für die einzelnen spektralen Komponenten des Lichtpulses. Diese läßt sich nach der Verstärkung mit Hilfe eines Kompressors wieder rückgängig machen. Nach der zeitlichen Dehnung der Lichtpulses wird er in einem Verstärker mit 8 Durchläufen (1. Verstärker) und einem Verstärker mit 4 Durchläufen (2. Verstärker) nachverstärkt. Die einzelnen Verstärkerstufen sind durch Pockelszellen optisch voneinander isoliert, um die Verstärkung von spontaner Emission⁵ zu unterdrücken. Nach der Verstärkung wird die Pulsdauer durch zwei Reflexionsgitter wieder komprimiert (Kompressor). Man erhält Pulse mit einer Energie bis zu 5 mJ bei einer Pulsdauer von ca. 80 fs und einer Repetitionsrate von 10 Hz. Die zeitliche Verbreiterung des Lichtpulses verglichen mit dem Anfangspuls ist im Wesentlichen auf eine Verkleinerung der Bandbreite bei der Verstärkung, auf eine spektrale Modulation des Spektrums und auf nicht kompensierbare höhere Ordnungen der Gruppengeschwindigkeitsdispersion in den optischen Komponenten zurückzuführen.

Die Pulsdauer läßt sich mit Hilfe eines Autokorrelators (Aufbau siehe [82]) messen. Dabei wird der Laserstrahl, dessen Pulsdauer zu bestimmen ist, in einem Michelson Interferometer aufgeteilt, dessen einer Arm in der Länge variabel ist. Das Autokorrelationssignal wird in Abhängigkeit von der zeitlichen Überlappung (Verschiebung) der beiden Pulse in einem nichtlinearen Kristall detektiert. Abbildung 3.11 zeigt eine typische Autokorrelationsspur. Um daraus die zeitliche Intensitätsverteilung des Lichtpulses zu erhalten, muß man die gemessene Funktion entfalten. Unter Annahme einer Lorentzverteilung (durchgezogen Kurve) ergibt sich eine Autokorrelationsbreite (FWHM) von 110 fs. Dies entspricht einer Pulsdauer von 80 fs (FWHM).

Um die Intensitätsverteilung im Laserfokus bestimmen zu können, muß neben der

⁴Chirped-Pulse-Amplification

⁵im englischen Sprachgebrauch ASE (amplified spontaneous emission)



Abbildungung 3.10.: Schematische Darstellung des Lasersystems I

Pulsdauer und der Pulsenergie auch die Fokusgröße bestimmt werden. Dazu wird mit einem Linsensystem eine vergrößernde Abbildung ($\times 12$) des Fokus auf eine CCD-Kamera erzeugt. Abbildung 3.12 zeigt den Schnitt durch den Fokus für eine Linse mit einer Brennweite $f = 150 \text{ mm}$. Die volle Halbwertsbreite (FWHM) beträgt $14 \text{ }\mu\text{m}$. Die Verteilung läßt sich sehr gut durch eine Gaußfunktion (durchgezogene Kurve) anpassen.

Die maximale erreichbare Intensität im Experiment beträgt ca. $I = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Um die Intensität der Lichtpulse zu variieren, wurde eine Kombination aus einer drehbaren $\lambda/2$ Verzögerungsplatte und einem nachgeschalteten Polarisator benutzt.

3. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von H_2/D_2

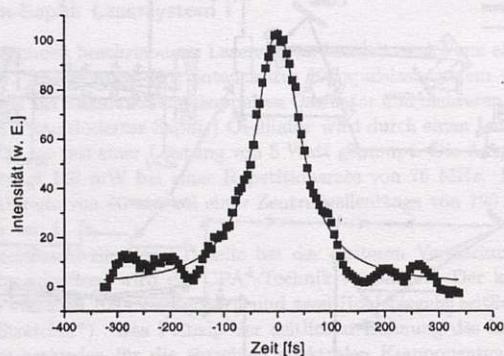


Abbildung 3.11.: Autokorrelationskurve des zeitlichen Profils der Intensitätsverteilung des Laserpulses (Lasersystem I)

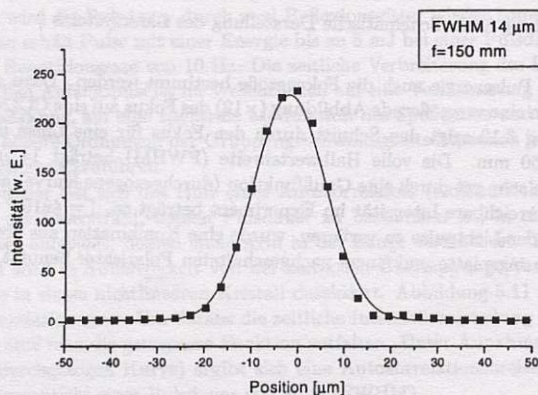


Abbildung 3.12.: Schnitt durch die Intensitätsverteilung in der Fokusebene des Laserpulses (Lasersystem I)

3.6.2. Titan-Saphir Lasersystem II

Bei dem Lasersystem II handelt es sich um ein Lasersystem der Firma Femtolasers (Femtosource, Omega Pro) im Femtosekunden-Applikationslabor des Max-Born-Institutes, das von Dr. M. Wittmann und Dr. G. Korn betreut wird. Es besteht aus einem modengekoppelten Ti:Sa Oszillator und einem Verstärker. Das Lasersystem liefert Pulse mit einer Energie von $(0,6 - 1)$ mJ, bei einer Repetitionsrate von 1 kHz. Die Zentralwellenlänge der Laserstrahlung liegt bei 790 nm. In Abbildung 3.13 ist die interferometrische Autokorrelationskurve zur Bestimmung der Pulsdauer dargestellt. Bei der Entfaltung des Spektrums unter Annahme einer Gaußschen Verteilung, erhält man eine Pulsdauer (volle Halbwertsbreite (FWHM)) von 28 fs. Die maximale Spitzenintensität im Experiment liegt bei $I \approx 4 \times 10^{15}$ W/cm². Um die Intensität des Lichtpulses zu variieren wurden teilreflektierende Spiegel in der Strahlführung verwendet.

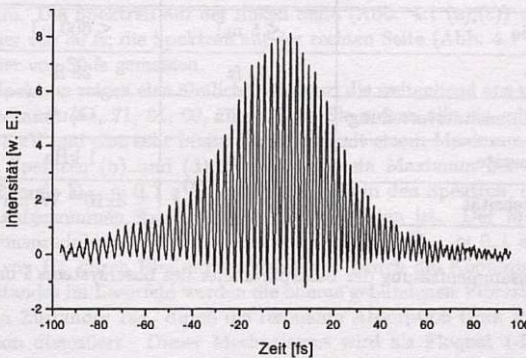


Abbildung 3.13.: Interferometrische Autokorrelationskurve des zeitlichen Profils der Intensitätsverteilung des Laserpulses (Lasersystem II)

Zur übersichtlicheren Darstellung sind in Tabelle 3.1 die Parameter der Lasersysteme I und II dargestellt.

3. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von H_2/D_2

	Lasersystem I	Lasersystem II
Pulsenergie	$\leq 5 \text{ mJ}$	$\leq 600 \text{ } \mu\text{J}$
Pulsdauer	80 fs	28 fs
Zeitliche Intensitätsverteilung	Lorentz	Gauß
Repetitionsrate	10 Hz	1 kHz
Spitzenintensität	$\leq 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$	$\leq 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

Tabelle 3.1.: Zusammenfassung der Laserparameter des Lasersystems I und II

4. Ionisations- und Dissoziationsdynamik von H_2/D_2 in intensiven Lichtfeldern

4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen

In Abbildung 4.1 ist die Verteilung der kinetischen Energie der Dissoziationsprodukte H^+/D^+ nach Wechselwirkung mit intensiver Laserstrahlung gezeigt. Die vier Spektren wurden bei einer Intensität von $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ gemessen. Die Anregungswellenlänge betrug 790 nm. Die Spektren auf der linken Seite (Abb. 4.1 (a),(c)) wurden bei einer Laserpulsdauer von 30 fs, die Spektren auf der rechten Seite (Abb. 4.1 (b),(d)) bei einer Laserpulsdauer von 80 fs gemessen.

Die vier Spektren zeigen eine ähnliche Struktur, die weitgehend aus vorangegangenen Messungen bekannt [64, 71, 84, 60, 75, 68] ist. Sie weisen alle ein scharfes Maximum bei $E_{\text{kin}} \approx 0,5 \text{ eV}$ und eine sehr breite Verteilung mit einem Maximum bei $E_{\text{kin}} \approx 3 \text{ eV}$ auf. In den Spektren (b) und (d) ist zusätzlich ein Maximum bei einer geringeren kinetischen Energie $E_{\text{kin}} \approx 0,1 \text{ eV}$ zu erkennen, das in den Spektren, die mit kürzeren Laserpulsen aufgenommen wurden, nicht zu beobachten ist. Der Mechanismus, der zu Dissoziationsprodukten mit einer kinetischen Energie $E_{\text{kin}} \approx 0,1 \text{ eV}$ führt, ist die Dissoziation von H_2^+ durch Bindungsaufweichung. Durch die Kopplung des $1s\sigma_g$ - und des $2p\sigma_u$ -Zustandes im Laserfeld werden die oberen gebundenen Vibrationszustände des elektronischen Zustandes $1s\sigma_g$ durch die resonante Absorption eines Photons frei, d.h. das Molekülion dissoziiert. Dieser Mechanismus wird als Floquet 1-Photonen Kanal beschrieben (siehe Abschnitt 2.4.2). Das Verschwinden der Linie bei 0,1 eV für kleine Pulsdauern 30 fs wurde auch in Messungen von [77] beobachtet und ist vermutlich auf durch Licht induzierte gebundene Zustände¹ [77] zurückzuführen.

Effektive 2-Photonen Dissoziation ist die Ursache für das Maximum bei einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} \approx 0,5 \text{ eV}$. Die breite Verteilung mit dem Maximum bei $E_{\text{kin}} \approx 3 \text{ eV}$ entsteht durch Photoionisation von H_2^+/D_2^+ bei einem Kernabstand von (6-8) a.u. und anschließender Coulomb-Explosion der Kerne. Der dazugehörige Photoionisations-Mechanismus ist in Abschnitt 2.4.3 beschrieben und wird als ladungsresonante Erhöhung der Ionisation (CREI) bezeichnet.

Die Abhängigkeit der Verteilung der kinetischen Energie der H^+/D^+ Photoionen von

¹Light induced bound states (LIBS)

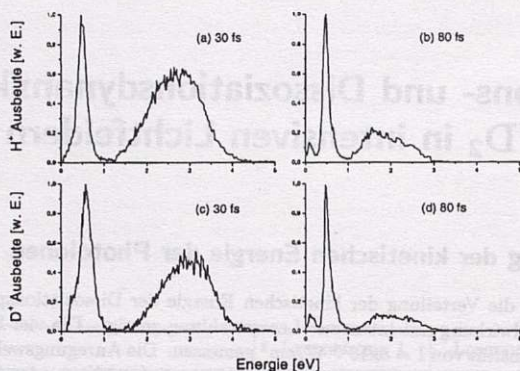


Abbildung 4.1.: Verteilung der kinetischen Energie der H^+ (oben) und D^+ (unten) Photoionen nach der Wechselwirkung von H_2/D_2 mit Laserpulsen der Wellenlänge 790 nm und einer Pulsdauer von 30 fs (links) und 80 fs (rechts). Die Lichtintensität für alle Spektren beträgt $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

der Lichtintensität ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Die Spektren wurden bei 790 nm Anregungswellenlänge und einer Pulsdauer von 30 fs gemessen. Die Struktur der Verteilung der kinetischen Energie hängt nur unwesentlich von der verwendeten Lichtintensität ab. Bei geringer Intensität ($I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$) dominiert das schmale Maximum in der Ionenausbeute bei $E_{\text{kin}} \approx 0,5 \text{ eV}$ das Spektrum und somit die Dissoziation im Floquet 2-Photonen Kanal. Für höhere Intensitäten dominiert die breite Verteilung mit einem Maximum bei $E_{\text{kin}} \approx 3 - 3,5 \text{ eV}$, die durch Coulomb-Explosion entsteht. Sie verschiebt sich für höhere Intensitäten leicht zu höheren Energien.

4.1.1. Floquet 2-Photonen Dissoziationskanal

Im Mittelpunkt der folgenden Untersuchung steht der Floquet 2-Photonen Dissoziationskanal. Nach der Photoionisation von H_2/D_2 kommt es zu einer Besetzung verschiedener Vibrationszustände von $\text{H}_2^+/\text{D}_2^+$, die anschließend mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit in dem Floquet 2-Photonen Kanal dissoziieren. Dabei ist die genaue Besetzung der einzelnen Vibrationszustände unbekannt und soll nun im Folgenden untersucht werden.

4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen

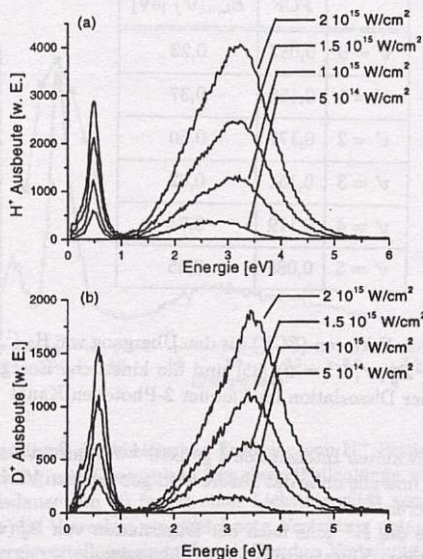


Abbildung 4.2.: Verteilung der kinetischen Energien der H^+ (a) und D^+ (b) Photoionen nach der Wechselwirkung mit Laserpulsen bei einer Wellenlänge von 790 nm und 30 fs Pulsdauer mit einer Lichtintensität zwischen $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $I = 1,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

Franck-Condon-Verteilung?

Nach der Photoionisation von H_2/D_2 nahe dem Gleichgewichtszustand von H_2/D_2 bei $R_e = 1,4 \text{ a.u.}$ kommt es zur Besetzung verschiedener Vibrationsniveaus im $1s\sigma_g$ -Zustand von H_2^+/D_2^+ . Die Zeitdauer des Ionisationsprozesses ist wesentlich kürzer als die Zeitskala für die Bewegung der Kerne. Es handelt sich also um eine Art Franck-Condon Übergang. Da die Gleichgewichtsabstände der Kerne für H_2/D_2 und H_2^+/D_2^+ stark voneinander abweichen, kommt es zur Besetzung verschiedener Vibrationszustände im H_2^+/D_2^+ . Die Franck-Condon Faktoren sind in Tabelle 4.1 für H_2 nach [85] zusammengestellt.

Für Intensitäten $I \geq 3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ öffnet sich der Floquet 2-Photonen Kanal [68].

	FCF	$E_{\text{kin}}(v')$ [eV]
$v' = 0$	0,087	0,23
$v' = 1$	0,156	0,37
$v' = 2$	0,171	0,50
$v' = 3$	0,151	0,62
$v' = 4$	0,119	0,74
$v' = 5$	0,088	0,85

Tabelle 4.1.: Franck-Condon-Faktoren (FCF) für den Übergang von H_2 ($^1\Sigma_g^+$, $v = 0$, $K = 0$) nach $\text{H}_2^+(^2\Sigma_g^+$, $v', K' = 0$) [85] und die kinetische Energie $E_{\text{kin}}(v')$ der Ionen nach der Dissoziation im Floquet 2-Photonen Kanal

Für die im Experiment gewählten Intensitäten $I \geq 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ist der Kanal für die Dissoziation weit geöffnet und alle ohne das äußere Feld gebundenen Vibrationszustände mit $v > 0$ können dissoziieren.

Die kinetische Energie des H^+ Ions nach der Dissoziation von $\text{H}_2^+(v')$ ist von dem vor der Dissoziation besetzten Vibrationsniveau v' abhängig:

$$E_{\text{kin}}(v') = \frac{1}{2}(E_{v'} - E_D + n\hbar\omega), \quad (4.1)$$

mit $E_{v'}$ der Energie des anfänglichen Vibrationszustandes des $\text{H}_2^+/\text{D}_2^+$, E_D der Dissoziationsenergie, und $n\hbar\omega$ der Anzahl der effektiv absorbierten Photonen. In Tabelle 4.1 ist die kinetische Energie für die verschiedenen Ausgangsniveaus v' gezeigt. Zur Vereinfachung der Berechnung wurden die Energieniveaus der ungestörten Vibrationszustände verwendet [86]. Hierbei wurde angenommen, daß nur der Rotationszustand $J=0$ besetzt ist.

In Abbildung 4.3 ist die gemessene Verteilung der kinetischen Energien von H^+ Photonen nach Wechselwirkung mit Laserpulsen bei einer Wellenlänge von 790 nm und einer Pulsdauer von 80 fs mit einer Lichtintensität von $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ gezeigt. Zusätzlich ist die kinetische Energie der H^+ Ionen nach der Dissoziation von $\text{H}_2^+(v')$ abhängig von dem vor der Dissoziation besetzten Vibrationsniveau v' eingezeichnet. Die dazugehörigen y-Werte sind proportional zu den Franck-Condon Faktoren.

Die gemessene Verteilung ist in diesem Fall wesentlich schmaler als die nach den Franck-Condon-Faktoren zu erwartende Verteilung, wenn man annimmt, daß die Vibrationszustände $v' = 0$ bis $v' = 5$ des Molekülions mit der gleichen Wahrscheinlichkeit

4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen

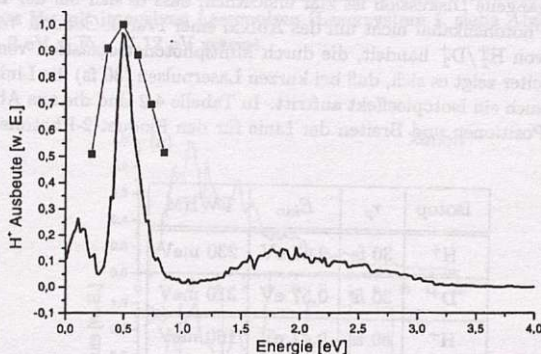


Abbildung 4.3.: Verteilung der kinetischen Energien von H^+ Photoionen nach Wechselwirkung mit Laserpulsen bei einer Wellenlänge von 790 nm und einer Pulsdauer von 80 fs mit einer Lichtintensität von $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die mit Vierecken eingezeichnete Verteilung entspricht der kinetischen Energieverteilung einer Franck-Condon Verteilung (näheres siehe Text).

dissoziieren. Damit zeigt sich, daß die gemessene Verteilung keine Franck-Condon Besetzung widerspiegelt.

Im Gegensatz zu unserem Experiment zeigen die Messungen von Walsh et. al. [75, 87] und Gibson et al. [68] eine gute Übereinstimmung der gemessenen Verteilung mit der Franck-Condon-Verteilung. Die Floquet 2-Photonen Linie ist also breiter als die hier gemessene. Die Messungen von Walsh et al. wurden mit 150 fs, 800 nm Lichtpulsen mit Lichtintensitäten im Bereich von $I = 1,3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bis $I = 9,3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ durchgeführt. Die Messungen von Gibson et al. wurden mit 40 fs, 800 nm Lichtpulsen, im Intensitätsbereich von $I \approx 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bis $I \approx 2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ausgeführt. Die experimentellen Bedingungen sind also vergleichbar mit diesem Experiment. Diese Messung unterscheidet sich von den zwei anderen in der Verwendung eines durch Überschallexpansion gekühlten Molekularstrahls, um das Energieauflösungsvermögen zu verbessern. Daher ist vermutlich die gemessene breitere Verteilung auf das mangelnde Auflösungsvermögen in diesen Experimenten zurückzuführen. Die Übereinstimmung der gemessenen Verteilungen mit der Franck-Condon Verteilung ist daher als Zufall anzusehen.

Linienbreite

Durch die vorangegangene Diskussion ist klar ersichtlich, dass es sich bei der Dissoziation im Floquet 2-Photonenkanal nicht um das Abbild einer Franck-Condon Verteilung Vibrationsniveaus von H_2^+/D_2^+ handelt, die durch Multiphotonenionisation von H_2/D_2 erzeugt wurden. Weiter zeigt es sich, daß bei kurzen Laserpuls (30 fs) die Linienbreite vergrößert ist und auch ein Isotopieeffekt auftritt. In Tabelle 4.2 sind die aus Abbildung 4.1 entnommenen Positionen und Breiten der Linie für den Floquet 2-Photonen Kanal aufgetragen.

Isotop	τ_p	E_{kin}	FWHM
H^+	30 fs	0,47 eV	230 meV
D^+	30 fs	0,57 eV	310 meV
H^+	80 fs	0,47 eV	160 meV
D^+	80 fs	0,47 eV	140 meV

Tabelle 4.2.: Zusammenstellung der Linienbreite für verschiedene Isotope und Pulsdauern

Ein nicht unmerklicher Beitrag zur Breite der Linie ist auf die Photoionisation von H_2/D_2 zurückzuführen. Aufgrund der Impulserhaltung ist der Impuls des bei der Photoionisation entstandenen Elektrons bis auf das Vorzeichen gleich dem Impuls des gebildeten Molekülions:

$$\vec{p}_e = -\vec{p}_{H_2^+}. \quad (4.2)$$

Kommt es durch die weitere Anregung im Laserfeld zu einer Dissoziation des Molekülions, beträgt der Impuls des H^+ Ions:

$$\vec{p}_{H^+} = \sqrt{2m_{H^+}E_{Diss}} \pm \vec{p}_e, \quad (4.3)$$

mit m_{H^+} der Masse des H^+ Korns und E_{Diss} der Dissoziationsenergie im Schwerpunktsystems des H_2^+ Molekülions. Für eine Dissoziationsenergie von 0,5 eV (Floquet 2-Photonen Kanal) und einer Elektronenenergie von 5 eV ergibt sich eine Verschiebung der Linie von ± 40 meV. Der Impulsübertrag nach der Photoionisation ist jedoch nicht auf einen festen Betrag fixiert, sondern weist, wie im Folgenden gezeigt wird, eine breite Verteilung auf.

Die Verteilung der kinetischen Energie der Photoelektronen ist sehr breit und erstreckt sich von 0 eV bis zu einer kinetischen Energie von 20 eV (nicht in Abbildung

4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen

4 gezeigt). Die meisten Elektronen verfügen über eine kinetische Energie < 10 eV. In Abbildung 4.4 ist die Verteilung der kinetischen Energie der Photoelektronen nach der Anregung von H_2 mit intensiven Laserpulsen (Lasersystem I, siehe Abschnitt 3.6.1) im Bereich von $0 \text{ eV} \leq E_{\text{kin}} \leq 12 \text{ eV}$ gezeigt.

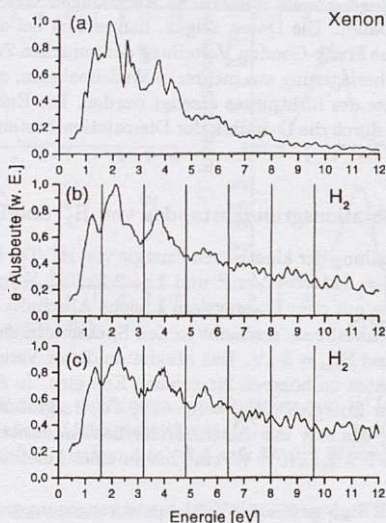


Abbildung 4.4.: Verteilung der kinetischen Energie der Elektronen bei der Wechselwirkung von H_2 (b),(c) und Xenon (a) mit Lichtpulsen mit 790 nm, einer Pulsdauer von 80 fs und einer Intensität von $I = 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (a),(b) bzw. $I = 6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (c)

Der Aufbau des Elektronenspektrometers ist in [27] beschrieben. Zur Eichung wurde die bekannte Verteilung der kinetischen Energie der Photoelektronen nach Multiphotonionisation von Xenon benutzt [88].

Die Verteilung der kinetischen Energie der Photoelektronen nach der Ionisation von H_2 ist wenig strukturiert. Die Wiederholung bestimmter Strukturen im Abstand einer Photonenenergie (gekennzeichnet durch die horizontalen Linien) ist ein typisches Merk-

mal für Photoionisation in ultrakurzen, intensiven Lichtpulsen (siehe Abschnitt 2.2.1) und wird als Ionisation über die Schwelle bezeichnet².

Die oben willkürlich gewählte Elektronenenergie von 5 eV liegt im Bereich typischer kinetischer Energien von Photoelektronen und zeigt damit die Größenordnung für die Verbreiterung der 2-Photonen Dissoziations-Linie. Diese Verbreiterung von $\Delta E \approx 80$ meV ist jedoch zu gering, um die im Experiment gemessenen Linienbreiten von $\Delta E \geq 160$ meV zu erklären. Eindimensionale numerische Rechnungen von Lein et al. [89] bestätigen die gemessenen Daten. Die Daten zeigen, daß es sich bei dem dissoziierenden Wellenpaket nicht um eine Frank-Condon Verteilung der ionischen Zustände handelt, sondern um eine komplexe Überlagerung aus mehreren Wellenpaketen, die zu verschiedenen Zeiten während der Dauer des Lichtpulses erzeugt werden. Die Energie der H^+/D^+ Fragmente ist hauptsächlich durch die Dynamik der Dissoziation bestimmt (näheres siehe [89]).

4.1.2. Ionisation des Vibrationsgrundzustandes von H_2^+ und D_2^+

In Abbildung 4.5 ist die Verteilung der kinetischen Energie von $\text{H}_2^+/\text{D}_2^+$ im Bereich hoher Lichtintensitäten zwischen $I = 1 \times 10^{15}$ W/cm² und $I = 2,5 \times 10^{15}$ W/cm² gezeigt. Die Anregung von H_2/D_2 erfolgte mit dem Lasersystem I (siehe Abschnitt 3.6.1).

Der Hauptanteil der Ionenausbeute erscheint in den Spektren in der breiten Verteilung zwischen $E_{\text{kin}} = 2$ eV und $E_{\text{kin}} = 5$ eV. Das Maximum dieser Verteilung verschiebt sich für höhere Lichtintensitäten zu höheren kinetischen Energien. In Abbildung 4.6 ist der Bereich hoher kinetischer Energien ($E_{\text{kin}} = (3 - 10)$ eV) vergrößert dargestellt. Es ist ein Plateau zu erkennen, das sich mit zunehmender Laserintensität entwickelt und sich bei einer Intensität von $I > 1,5 \times 10^{15}$ W/cm² bis zu einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} \approx 9$ eV erstreckt.

Die breite Verteilung mit $E_{\text{kin}} \approx 2 - 5$ eV ist aus vorangegangenen Experimenten bekannt. Es handelt sich hier um Ionen, die durch Coulomb-Explosion nach der Photoionisation von $\text{H}_2^+/\text{D}_2^+$ bei einem Kernabstand zwischen 6 a.u. und 8 a.u. erzeugt werden. Der zugrunde liegende CREI Ionisationsmechanismus wurde in Abschnitt 2.4.3 bereits beschrieben.

Die Schulter im hochenergetischen Bereich der Ionen ist bisher nicht beobachtet worden. Diese neue Struktur ist sowohl für H_2 als auch D_2 zu finden. Sie ist für beide Isotope bei den hier gezeigten Laserintensitäten vorhanden. In der folgenden Diskussion werden die Ionen, aus der breiten Verteilung als CREI-Ionen bezeichnet und die Ionen in der hochenergetischen Schulter als Schulter-Ionen. Die Höhe der Schulter nimmt mit kleiner werdender Lichtintensitäten ab. Zugleich läßt sich beobachten, daß die untere Grenze der kinetischen Energie E_{min} , oberhalb der die Schulter zu finden ist, sich zu kleineren kinetischen Energien verschiebt, wenn die Lichtintensität verringert

² Above threshold ionization (ATI)

4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen

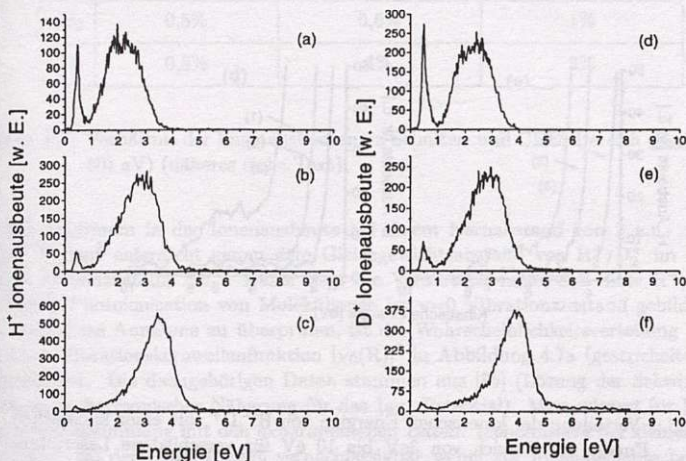


Abbildung 4.5.: Verteilung der kinetischen Energien von H^+ (a,b,c), D^+ (d,e,f) für verschiedene Lichtintensitäten ((a),(d) $I = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, (b),(e) $I = 2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und (c),(f) $I = 2,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$)

wird. E_{\min} ist durch den steilen Abfall in der Verteilung der CREI-Ionen bestimmt. Die hochenergetische Grenze der Schulterionen ist bei ca. $E_{\text{kin}} \approx 9 \text{ eV}$ zu finden und ist nahezu unabhängig von der Lichtintensität. Das Verhältnis der Ausbeuten an Schulterionen zu den CREI-Ionen wächst mit steigender Laserintensität. Es ist für H_2 und D_2 für verschiedene Laserintensitäten in Tabelle 4.3 aufgetragen.

Aufgrund der hohen kinetischen Energie, liegt die Vermutung nahe, daß es sich wie bei den CREI-Ionen um Ionen aus einer Coulomb-Explosion handelt. Im Fall von H_2 und D_2 kommt es durch den kompletten Verlust der Elektronen zur Coulomb-Explosion. Der Abstand der Kerne zum Zeitpunkt der Photoionisation kann aus der kinetischen Energie der H^+/D^+ Ionen bestimmt werden:

$$R = \frac{e^2}{2E_{\text{kin}} - E_0}, \quad (4.4)$$

mit e der Elementarladung und E_0 der kinetischen Energie der Kerne vor der Photoionisation des zweiten Elektrons. Unter der Annahme, daß E_0 wesentlich kleiner als die

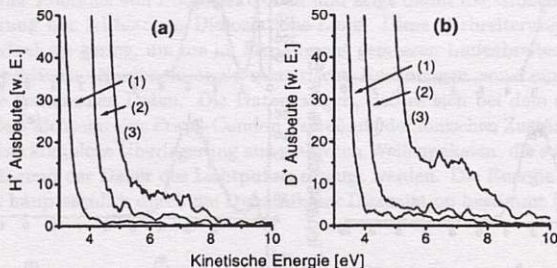


Abbildung 4.6.: Verteilung der kinetischen Energien von H^+ , D^+ mit einer kinetischen Energie im Bereich von 3 eV bis 10 eV für verschiedene Laserintensitäten ((1) $I = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, (2) $I = 2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und (3) $I = 2,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$)

gemessen kinetische Energie $2E_{\text{kin}}$ ($8 \text{ eV} \leq 2E_{\text{kin}} \leq 17 \text{ eV}$) ist, läßt sich Gleichung 4.4 vereinfachen zu:

$$R = \frac{e^2}{2E_{\text{kin}}}. \quad (4.5)$$

Die Annahme ist sicherlich gerechtfertigt, da die auftretenden Dissoziationsenergien im Experiment, z.B. für den Floquet 2-Photonen Kanal, bei $\approx 0,5 \text{ eV}$ liegen. Damit läßt sich aus der Verteilung der kinetischen Energie die Verteilung der Ionenausbeute in Abhängigkeit vom Kernabstand bestimmen, bei dem das Molekül komplett photoionisiert ist.

In Abbildung 4.7 ist diese Verteilung für Ionen in einem Energiebereich $8 \text{ eV} \leq 2E_{\text{kin}} \leq 17 \text{ eV}$ aufgezeigt. Unter der Annahme $E_0 = 0$ entstehen die Schulter-Ionen bei Kernabständen zwischen 1,5 a.u. und 4 a.u. Für beide Isotope bildet sich für die höchste Lichtintensität ein Maximum bei $\approx 2 \text{ a.u.}$ aus. Für die kleineren Intensitäten zeigt sich nur eine Schulter und kein ausgeprägtes Maximum. Unabhängig von der Lichtintensität zeigt sich ein steiler Abfall bei kleinen Kernabständen. Der zugrunde liegende Ionisationsmechanismus kann nicht durch ladungsresonante Photoionisation erklärt werden, da sie nur für Kernabstände $\geq 6 \text{ a.u.}$ auftreten kann.

4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen

	$I = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$	$I = 1,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$	$I = 2,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$
H_2	0,5%	0,6%	1%
D_2	0,8%	1%	3%

Tabelle 4.3.: Verhältnis der Ionenausbeuten im Schulter- und CREI-Bereich ($E_{\text{kin}} = (3-10) \text{ eV}$) (näheres siehe Text)

Das Maximum in der Ionenausbeute bei einem Kernabstand von 2 a.u. für $I \geq 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ entspricht genau dem Gleichgewichtsabstand von $\text{H}_2^+/\text{D}_2^+$ im elektronischen Grundzustand $1s\sigma_g$. Daher liegt die Vermutung nahe, daß diese H^+/D^+ Ionen durch Photoionisation von Molekülionen im $v=0$ Vibrationszustand gebildet werden. Um diese Annahme zu überprüfen, ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung der ungestörten Vibrationskernwellenfunktion $|\chi_0(R)|^2$ in Abbildung 4.7a (gestrichelte Linie) eingezeichnet. Die dazugehörigen Daten stammen aus [86] (Lösung der Schwingungsgleichung in harmonischer Näherung für das $1s\sigma_g$ Potential). Man erkennt für H_2^+ eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Insbesondere bei kleinen Kernabständen, wo der CREI-Prozeß vernachlässigbar wenig zur Ionenausbeute beitragen sollte, werden die experimentellen Daten exzellent reproduziert. Dies unterstützt die These, daß der Ursprung dieser Ionen der Vibrationsgrundzustand von H_2^+ ist. Weiter läßt sich daraus schließen, daß bei der Wechselwirkung von H_2 mit starken Laserfeldern zunächst H_2^+ gebildet wird, das dann weiter photoionisiert wird. Es handelt sich somit um einen sequentiellen Prozess. Eine direkte doppelte Photoionisation von H_2 führt zu einer Verteilung der kinetischen Energien, der der Vibrationsgrundzustand im elektronischen Zustand $X^1\Sigma_g^+$ zugrunde liegt. In Abbildung 4.7a ist die entsprechende Verteilung als gepunktete Kurve mit einem Maximum bei $R_0 = 1,4 \text{ a.u.}$ eingezeichnet. Die gemessene Ionenausbeute ist in diesem Bereich praktisch Null.

Für D_2 ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung $|\chi_0(R)|^2$ zu schmal (siehe Abbildung 4.7(b) gestrichelte Kurve), um die experimentell ermittelten Ionenausbeuten zu beschreiben. Um eine bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zu erreichen, ist es sinnvoll, auch den ersten angeregten Vibrationszustand von D_2^+ einzubeziehen. Der Ansatz für die Wahrscheinlichkeitsverteilung erfolgt in einer teilweise kohärenten Form mit:

$$a[\chi_0^2(R) + b\chi_1^2(R) + c\chi_1(R)\chi_0(R)], \quad (4.6)$$

wobei χ_0 die Wellenfunktion des Vibrationsgrundzustandes und χ_1 die Wellenfunktion des ersten angeregten Vibrationszustandes ist. Ebenso wie $\chi_0(R)$ ist auch $\chi_1(R)$ eine Lösung der Schwingungsgleichung der Kerne in harmonischer Näherung für das $1s\sigma_g$

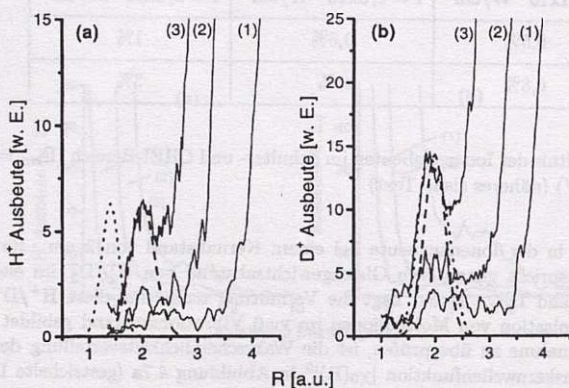


Abbildung 4.7.: Ionenausbeute in Abhängigkeit vom Kernabstand (nach Gleichung 4.5)

Potential von D_2^+ . Sowohl χ_0 als auch χ_1 sind reelle Funktionen. Eine gute Anpassung von Gleichung 4.6 an die gemessenen Daten (siehe Abbildung 4.7b) erhält man mit den folgenden Parameter: $b=0,45$ und $c=-0,14$. Die daraus entstehende Verteilung ist in Abbildung 4.7b als gepunktete Kurve eingezeichnet. Eine komplette inkohärente Überlagerung von χ_1 und χ_2 , d.h. $c=0$ führt zu einer Überschätzung der Ionenausbeute im Bereich $R > 2$ a.u. Für eine komplette kohärente Überlagerung ($c = \pm 2\sqrt{b}$) würde sich ein $c = \pm 1,34$ ergeben. Das bestimmte $c = -0,14$ entspricht daher einer nahezu inkohärenten Überlagerung.

Zusammenfassend müssen 3 Bedingungen erfüllt sein, damit die oben gegebene Interpretation sinnvoll ist:

1. Die kinetische Energie der Kerne vor der zweiten Ionisation muss klein sein im Vergleich zu der beobachteten kinetischen Energie der Schulter-Ionen.
2. Die Ionisationswahrscheinlichkeit für das Molekülion muß unabhängig vom Kernabstand im Bereich der nichtverschwindenden Kernwellenfunktionen nahe 1 sein. In Abbildung 4.8 sind die Ionisationswahrscheinlichkeiten in Abhängigkeit vom Kernabstand für verschiedene Laserintensitäten aufgetragen. Sie wurden mit Hilfe der ADK-Formel ermittelt [5]. Das zur Berechnung notwendige R-abhängige Ionisationspotential ist ebenfalls in Abbildung 4.8 dargestellt [70]. Für Laserintensitäten größer $I = 1,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ist die Ionisationswahrscheinlichkeit im

relevanten Bereich von R nahezu 1.

3. Eine hinreichend große Besetzung der Zustände $v=0,1$ muß bis zum Erreichen der Intensität $I = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ vorhanden sein.

Die experimentellen Daten zeigen, daß für H_2^+ offensichtlich nur $v=0$ besetzt bleibt, während für D_2^+ beide Zustände $v=0,1$ besetzt bleiben. Der Verlustkanal für diese Zustände besteht in der Photodissoziation.

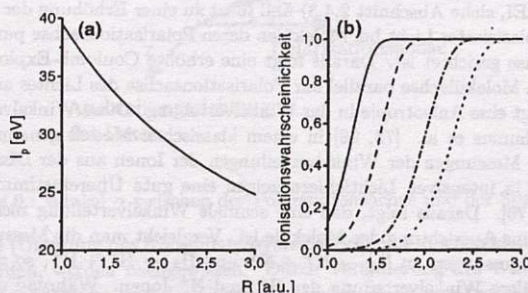


Abbildung 4.8.: (a) Ionisationspotential in Abhängigkeit vom Kernabstand. (b) Ionisationswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit vom Kernabstand (näheres siehe Text)

4.1.3. Ausrichtung von Molekülen in intensiven Lichtfeldern

Für die verschiedenen Dissoziationsmechanismen, wie die Dissoziation durch den Floquet 1,-2-Photonen Kanal oder durch Coulomb-Explosion, ist die Ausrichtung der Molekülverbindungsachse entlang der Polarisationsachse des Lichtes von entscheidender Bedeutung. Bei kleiner Lichtintensität ist eine Dissoziation in diesen Kanälen nur für Moleküle möglich, deren Kernverbindungsachse entlang der Polarisationsachse des Lichtes gerichtet ist. Daher wird angenommen, daß es für kleine Moleküle, deren Kernverbindungsachse anfänglich nicht entlang der Polarisationsachse ausgerichtet ist, zu einer Ausrichtung durch die intensive Lichtwelle kommt [57, 90, 91, 92]. Dies geschieht im Fall von

symmetrischen zweiatomigen Molekülen durch ein Drehmoment, das auf ein durch das Lichtfeld induziertes Dipolmoment ausgeübt wird. Verschiedene Experimente [93, 94, 95] unterstützen diese Vermutung aufgrund der sehr engen Winkelverteilung der geladenen Dissoziationsfragmente um die Polarisationsachse des Lichtes nach der Wechselwirkung mit intensiver Lichtstrahlung. Verschiedene Pump-Probe Messungen [96, 97] geben weitere Hinweise auf diese Ausrichtung. Aufgrund dieser experimentellen Befunde haben sich die meisten theoretischen Arbeiten auf lineare Modelle [57, 90, 91] beschränkt, d.h. die Kernverbindungsachse ist entlang der Polarisationsachse des Lichtes gerichtet. Verschiedene Arbeiten zeigten jedoch, daß eine Anisotropie in der Winkelverteilung nicht unbedingt durch eine Ausrichtung des Moleküls bedingt sein muß. Die Dissoziation durch Coulomb-Explosion findet bei dem 1,3 bis 4-fachen des Gleichgewichtsabstandes der Kerne statt (CREI, siehe Abschnitt 2.4.3) und führt zu einer Erhöhung der Ionisationsrate für linear polarisiertes Licht bei Molekülen deren Polarisationsachse parallel zur Kernverbindungsachse gerichtet ist. Daraus folgt eine erhöhte Coulomb-Explosion von Molekülonen, deren Molekülachse parallel zur Polarisationsachse des Lichtes ausgerichtet ist und somit folgt eine Anisotropie in der Winkelverteilung. Diese Winkelverteilung läßt sich nach Posthumus et al. [73, 98] in einem klassischen Modell genannt FICE-Modell³ berechnen. Messungen der Winkelverteilungen der Ionen aus der Dissoziation von $\text{I}_2 \rightarrow \text{I}^+ + \text{I}^{2+}$ in intensiven Lichtfeldern zeigen eine gute Übereinstimmung mit diesem Modell [99, 76]. Daraus folgt, daß eine schmale Winkelverteilung nicht unbedingt ein Indiz für eine Ausrichtung der Moleküle ist. Vergleicht man die Messungen an $\text{I}_2 \rightarrow \text{I}^+ + \text{I}^{2+}$ mit Messungen an $\text{N}_2 \rightarrow \text{N}^+ + \text{N}^+$ und $\text{H}_2 \rightarrow \text{H}^+ + \text{H}^+$, so zeigt sich eine sehr viel schmalere Winkelverteilung der H^+ und N^+ Ionen. Während die Halbwertsbreite der Winkelverteilung der I^{2+} Ionen mit zunehmender Intensität zunimmt, bleibt die Halbwertsbreite der N^+ und H^+ Ionen in dem untersuchten Intensitätsintervall $I = 9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $I = 8 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ konstant. Daraus läßt sich schließen, daß es für leichtere Moleküle wie N_2 und H_2 im Gegensatz zu dem schwereren Molekül I_2 zu einer Ausrichtung des Moleküls kommt.

Die Dissoziation von H_2 erfolgt in zwei Schritten, zunächst wird durch Multiphotonenionisation H_2^+ nahe dem Gleichgewichtsabstand von H_2 erzeugt. Das Molekül dissoziiert zunächst im Floquet 1- und 2-Photonen Kanal, dabei durchläuft das dissoziierende Molekül einen Bereich von Kernabständen, in dem es zu einer stark erhöhten Photoionisation mit anschließender Coulomb-Explosion (CREI) der beiden Kerne kommt. Messungen von Talebpour et al. [100] weisen darauf hin, daß es wahrscheinlich zu keiner Ausrichtung des neutralen Systems kommt (D_2). Erst nach dem ersten Schritt, der Photoionisation von H_2 , erfolgt eine Ausrichtung des Moleküls. Numerische Rechnungen von Bandrauk et al. [101] zeigen, daß es zu einem Drehmoment auf das durch das Laserfeld induzierte Dipolmoment des H_2^+ Ions kommt. Die zur Ausrichtung des Moleküls benötigte Zeit beträgt im klassischen Modell zwischen 30 fs und 80 fs. Bisherige Mes-

³field-ionization Coulomb explosion model

sungen [99, 76, 60] wurden mit Lichtpulsen mit einer minimalen Dauer von 50 fs bzw. 55 fs durchgeführt. Daher ist es von Interesse, ob mit kürzeren Pulsen die Ausrichtung der H_2^+ bzw. D_2^+ Ionen verhindert wird. Die für dieses Experiment gewählte Pulsdauer beträgt 28 fs (Lasersystem II siehe Abschnitt 3.6.2).

In Abbildung 4.9 ist schematisch die Versuchsanordnung gezeigt. Ionen, die im Laser-

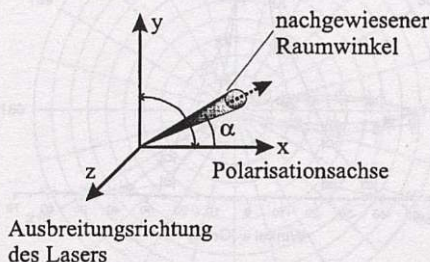


Abbildung 4.9.: Winkel α zwischen der Polarisationsachse und der Spektrometerachse

fokus erzeugt (Ursprung des Koordinatensystems xyz) und in einen kleinen Raumwinkel emittiert werden, werden nachgewiesen. Durch Veränderung des Winkels α zwischen der Polarisationsrichtung und der Nachweisrichtung (Spektrometerachse), läßt sich die Winkelverteilung bestimmen. Im Experiment wurde die Änderung des Winkels α durch eine Drehung der Polarisationsachse mit Hilfe einer $\lambda/2$ Verzögerungsplatte erzielt. Die Drehung erfolgt in der xy -Ebene (siehe Abbildung 4.9). Der Aufbau ist in Kapitel 3 beschrieben.

In Abbildung 4.10 ist die Winkelverteilung der geladenen Dissoziationsfragmente aus der Dissoziation von H_2 und D_2 durch Coulomb-Explosion gezeigt. Zusätzlich ist in Abbildung 4.11 die Winkelverteilung von D^+ aus der Dissoziation durch Coulomb-Explosion in einem Polar-Diagramm gezeigt. Es ergibt sich sowohl für die Winkelverteilung der H^+ als auch der D^+ Ionen eine sehr schmale Verteilung um die Polarisationsachse. Die volle Halbwertsbreite der Verteilung beträgt 25° . Messungen von Posthumus et al. [76] zeigen eine Halbwertsbreite von $\approx 30^\circ$ bei Intensitäten von $I = 9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $I = 9 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die gemessenen Werte sind damit in einer guten Übereinstimmung mit den vorangegangenen Messungen bei längeren Pulsdauern. Somit ist die für die Ausrichtung des Moleküls benötigte Zeit deutlich unter 30 fs. Dies wird durch die Feststellung bestätigt, daß sich zwischen der Winkelverteilung der H^+ Ionen und der Winkelverteilung der D^+ Ionen kein Unterschied zeigt trotz des größeren Trägheitsmomentes von D_2^+ und der damit verbundenen langsameren Ausrichtung (siehe Abbildung 4.10). Die Winkelverteilung der D^+ Ionen, die aus der Dissoziation im Floquet 2-Photonen

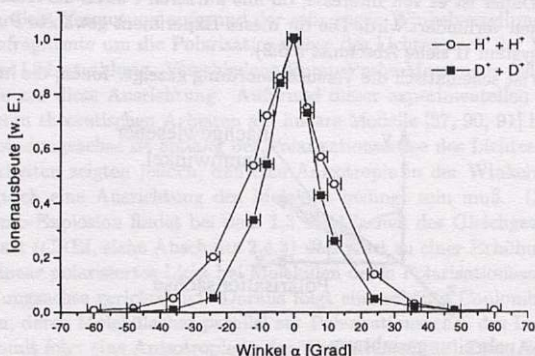


Abbildung 4.10.: Normierte Winkelverteilung der H^+/D^+ Ionen aus dem Zerfallskanal $\text{H}_2/\text{D}_2 \rightarrow \text{H}^+/\text{D}^+ + \text{H}^+/\text{D}^+$

Kanal stammen, sind in Abbildung 4.11 ($\text{D}_2 \rightarrow \text{D}^+ + \text{D}$) zusätzlich eingezeichnet. Diese Winkelverteilung entspricht im Rahmen der Auflösung der der Ionen aus der Dissoziation durch Coulomb Explosion. Dies legt den Schluß nahe, daß die Ionen aus der Coulomb-Explosion vor der Photoionisation im CREI-Bereich im Floquet 2-Photonen dissoziiert sind.

4.1.4. Polarisationsabhängigkeit

Abbildung 4.12 zeigt die Verteilungen der kinetischen Energien der H^+ Ionen nach der Anregung mit elliptisch polarisiertem Licht für verschiedene Elliptizitäten. Das elektrische Feld einer elliptisch polarisierten Lichtwelle, deren Polarisationsvektor in der xy-Ebene liegt, läßt sich allgemein schreiben als:

$$E(t) = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix} = E_0(t) \begin{pmatrix} a \cdot \cos(\omega t) \\ b \cdot \sin(\omega t) \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (4.7)$$

mit ω der Frequenz des Lichtes und $E_0(t)$ der zeitlich variierenden Amplitude des Laserfeldes. Das Verhältnis der Amplituden a und b definiert die Elliptizität ξ

$$\xi = \frac{b}{a}, \quad (4.8)$$

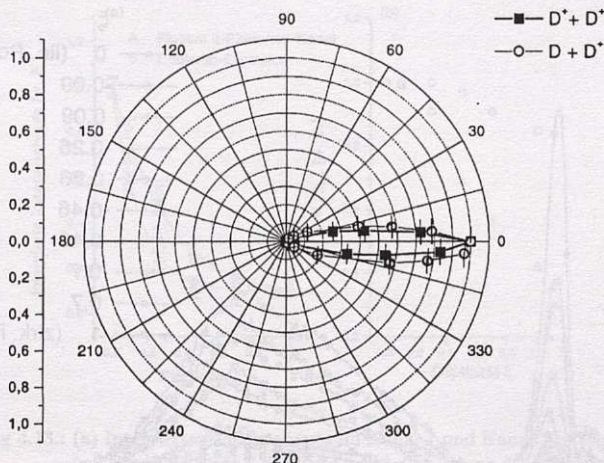


Abbildung 4.11.: Normierte Winkelverteilung der D^+ Ionen aus dem Zerfallskanal $D_2 \rightarrow D^+ + D^+$ (Coulomb-Explosion) und dem Zerfallskanal $D_2 \rightarrow D + D^+$ (Floquet 2-Photonen Kanal)

mit $b \leq a$, das heißt die große Halbachse der Ellipse ist in Richtung der x-Achse gerichtet. Für $\xi = 0$ ergibt sich linear polarisiertes Licht, für $\xi = 1$ erhält man zirkular polarisiertes Licht. Bei der in Abbildung 4.12 dargestellten Messung ist die x-Achse parallel zur Achse des Spektrometers gewählt. Die Messung zeigt deutlich, daß mit zunehmender Elliptizität sowohl die Ionenausbeute durch Dissoziation im Floquet 2-Photonen Kanal ($E_{kin} = 0,3 \text{ eV}$ bis $E_{kin} = 1,2 \text{ eV}$) (Kanal 1), als auch die Ionenausbeute aus der Dissoziation durch Coulomb-Explosion ($E_{kin} = 1,2 \text{ eV}$ bis $E_{kin} = 6 \text{ eV}$) (Kanal 2) abnimmt. Die integrierten Ionenausbeuten in beiden Dissoziationskanälen sind in Abbildung 4.13 dargestellt. Zur übersichtlicheren Darstellung wurden die beiden Ausbeuten auf die Ausbeute für $\xi = 0$ normiert. Dabei zeigt sich, daß die Ionenausbeute im Kanal 1 mit zunehmender Elliptizität stärker abnimmt als die Ausbeute im Kanal 2.

Die in Abschnitt 4.1.3 vorgestellte Messung der Winkelverteilung der geladenen Dissoziationsfragmente legen den Schluß nahe, daß es zu einer Ausrichtung von H_2^+ / D_2^+ im

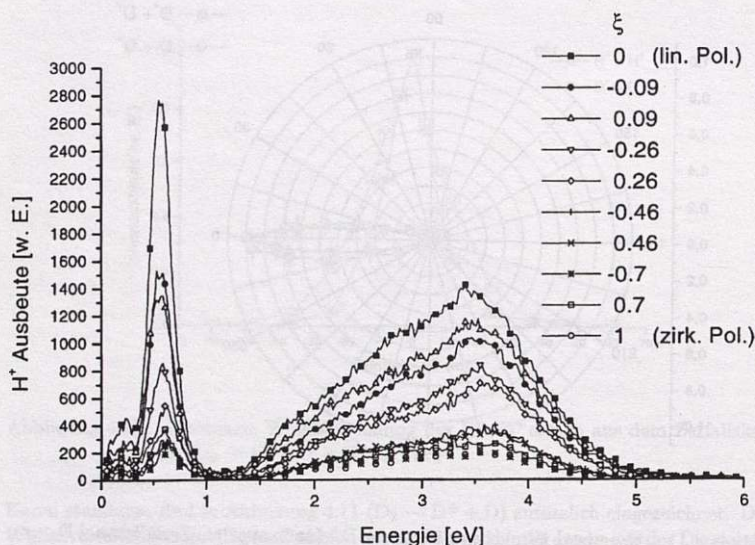


Abbildung 4.12.: Verteilung der kinetischen Energie von H^+ Photoionen in Abhängigkeit von der Elliptizität ξ des Lichtes (näheres im Text). Die Pulsenergie beträgt $300 \mu\text{J}$ und die Pulsdauer 28 fs

Laserfeld kommt. Diese Ausrichtung erfolgt entlang der Polarisationsachse des Lichtes. Bei der Anregung durch elliptisch polarisiertes Licht liegt im Gegensatz zu linear polarisiertem Licht die Polarisationsachse im Raum nicht fest. Daher soll im Folgenden die Ausrichtung eines dissoziierenden H_2^+ Moleküls in einem elliptisch polarisierten Lichtfeld qualitativ näher untersucht werden.

Symmetrische Moleküle wie H_2 und H_2^+ sind unpolar, d.h. sie haben kein permanentes Dipolmoment, es kann aber ein Dipolmoment durch ein äußeres elektrisches Feld induziert werden. Die Wechselwirkung des induzierten Dipolmomentes mit diesem elektrischen Feld führt zu einem Drehmoment, das eine Ausrichtung des Moleküls bewirkt. Die Kernverbindungsachse sei entlang der x' -Achse (in der xy -Ebene⁴) ausgerichtet (siehe

⁴Zur Vereinfachung der Überlagerung wird angenommen, daß die Kernverbindungsachse in der x,y -Ebene (Polarisationsebene) liegt und der Drehimpuls des Moleküls keine Komponenten in dieser

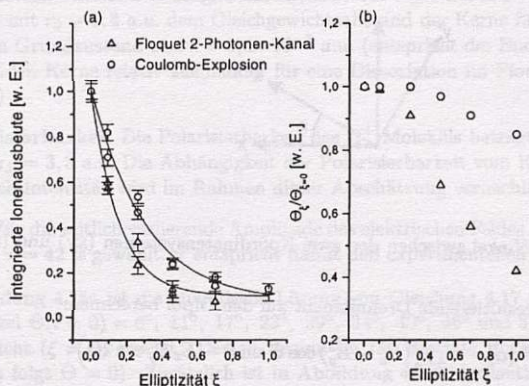


Abbildung 4.13.: (a) Integrierte Ionenausbeute im Kanal 1 und Kanal 2 in Abhängigkeit von der Elliptizität ξ des Lichtes (b) Abnahme des kritischen Winkels mit zunehmender Elliptizität des Lichtes für kleine Δ und große \bigcirc Dissoziationsgeschwindigkeiten

Abbildung 4.14). Definiert man Θ als den Winkel zwischen der Kernverbindungsachse (x' -Achse) und der raumfesten x -Achse, so ergibt sich für die Feldstärkekomponenten parallel \parallel und senkrecht \perp zur Kernverbindungsachse:

$$E_{\parallel} = E_x * \cos \Theta + E_y * \sin \Theta, \quad (4.9)$$

$$E_{\perp} = -E_x * \sin \Theta + E_y * \cos \Theta. \quad (4.10)$$

Für das induzierte Dipolmoment im Koordinatensystem ($x'y'$) des Moleküls ergibt sich:

$$\vec{d} = \begin{pmatrix} \alpha_{\parallel} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{\perp} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel} \\ E_{\perp} \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (4.11)$$

Durch eine Transformation des Dipolvektors auf das Koordinatensystem (xy):

$$\vec{d} = \begin{pmatrix} \cos \Theta & -\sin \Theta & 0 \\ \sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \vec{d} \quad (4.12)$$

Ebene hat.

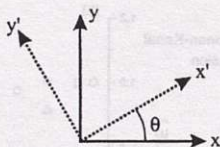


Abbildung 4.14.: Winkel zwischen den zwei Koordinatensystemen (xy) und $(x'y')$

läßt sich daraus das resultierende Drehmoment auf den Dipol berechnen:

$$N_z = -(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \left((E_x^2 - E_y^2) \cos \Theta \sin \Theta - E_x E_y \cos 2\Theta \right). \quad (4.13)$$

Es führt zu einer Änderung der z-Komponente des Drehimpulses des Moleküls:

$$N_z = \frac{dL_z}{dt}. \quad (4.14)$$

L_z ist gegeben durch:

$$L_z = \mu r^2 \dot{\Theta}, \quad (4.15)$$

mit μ der reduzierten Masse, $r(t)$ dem Abstand der beiden Kerne. Mit $I = \mu r^2(t)$ dem Trägheitsmoment des Moleküls erhält man aus Gleichung 4.14 und Gleichung 4.15:

$$N_z = \frac{dL_z}{dt} = I \ddot{\Theta} + 2I \frac{\dot{\Theta}}{r} \dot{r}. \quad (4.16)$$

Mit Gleichung 4.13 ergibt sich:

$$-(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \left((E_x^2 - E_y^2) \cos \Theta \sin \Theta - E_x E_y \cos 2\Theta \right) = I \ddot{\Theta} + 2I \frac{\dot{\Theta}}{r} \dot{r}. \quad (4.17)$$

Die rechte Seite von Gleichung 4.17 enthält zwei Terme: Der erste Term beschreibt die Änderung des Drehimpulses aufgrund der Veränderung der Winkelgeschwindigkeit, der zweite Term die Veränderung des Drehimpulses aufgrund der Änderung des Kernabstandes. Durch die Lösung von Gleichung 4.17 kann der Endwinkel nach der Dissoziation ($R \rightarrow \infty$) für vorgegebene Anfangsbedingungen berechnet werden. Im Folgenden soll nun anhand eines einfachen qualitativen Modells die Drehung eines Moleküls mit einem sich zeitlich verändernden Trägheitsmoment (dissoziierendes Molekül) in einem elliptisch polarisierten Lichtfeld untersucht werden.

Für die folgende Rechnung wurden die unten aufgelisteten Parameter verwendet:

4.1. Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen

- **Trägheitsmoment** Das Trägheitsmoment sei für $t \geq 0$ durch $I = m(r_0 + \dot{r}t)^2$ gegeben, mit $r_0 = 1,4 \text{ a.u.}$ dem Gleichgewichtsabstand der Kerne für H_2 im elektronischen Grundzustand und $\dot{r} = 9,1 \cdot 10^{-3} \text{ a.u.}$ (entspricht der Endgeschwindigkeit der beiden Kerne relativ zueinander für eine Dissoziation im Floquet 2-Photonen Kanal)
- **Polarisierbarkeit** Die Polarisierbarkeit des H_2^+ Moleküls beträgt nach [101] $\alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp} = 3,3 \text{ a.u.}$ Die Abhängigkeit der Polarisierbarkeit vom Kernabstand und der Lichtintensität wird im Rahmen dieser Abschätzung vernachlässigt.
- **Feld** Für die zeitlich variierende Amplitude des elektrischen Feldes $E_0(t) = e^{4 \ln 2 (t/\tau)^2}$ wurde $\tau = 42 \text{ fs}$ gewählt. τ entspricht damit den experimentellen Bedingungen.

In Abbildung 4.15a ist die numerische Lösung von Gleichung 4.17 für verschiedene Anfangswinkel $\Theta(t=0) = 6^\circ, 11^\circ, 17^\circ, 23^\circ, 29^\circ, 34^\circ, 40^\circ, 46^\circ$ und 51° für linear polarisiertes Licht ($\xi = 0$) gezeigt. Der zu Beginn im H_2^+ besetzte Rotationszustand sei $J=0$ (daraus folgt $\dot{\Theta} = 0$). Zusätzlich ist in Abbildung 4.15b der zeitliche Verlauf der elektrischen Feldstärke dargestellt. Man sieht sehr deutlich, daß zu Beginn eine Drehung des Moleküls stattfindet. Die zu Beginn durch das Drehmoment hervorgerufene Winkelgeschwindigkeit wird sehr schnell durch die Änderung des Trägheitsmomentes (Dissoziation) des Moleküls abgebremst und führt schließlich zu einem konstanten Winkel. Es zeigt sich, daß mit zunehmendem Anfangswinkel auch der Endwinkel wächst, d.h. die Pulsdauer ist zu kurz um eine vollständige Ausrichtung des Moleküls zu erreichen. Wählt man die Dissoziationsgeschwindigkeit höher (Faktor 2), so zeigt sich für kleine Zeiten ein ähnliches Verhalten, jedoch erfolgt aufgrund der größeren Dissoziationsgeschwindigkeit ein schnelleres Abbremsen der Winkelgeschwindigkeit und somit ein größerer Endwinkel. Vergleicht man das Verhalten für die beiden gewählten Geschwindigkeiten, so zeigt sich, daß innerhalb der ersten Oszillationsperioden die Dynamik durch das äußere elektrische Feld bestimmt und nahezu identisch verläuft. Für größere Zeiten ist die Änderung der Winkelgeschwindigkeit durch die Dissoziationsgeschwindigkeit (Änderung des Trägheitsmoments) festgelegt.

Im Experiment werden Ionen nachgewiesen, für die der Winkel Θ für große Zeiten $|\Theta| \leq 2,3^\circ$ ist. Die Rechnung zeigt, daß dann nur für Anfangswinkel kleiner oder gleich einem kritischen Winkel ein Nachweis des Ions erfolgt, da sich ein Endwinkel von $\Theta \leq 2,3^\circ$ ergeben muß. Der kritische Winkel θ_c hängt stark von der Elliptizität des eingestrahnten Lichtes ab. In Abbildung 4.13b ist die Abhängigkeit des kritischen Winkels von der Elliptizität des Lichtes für die beiden Geschwindigkeiten gezeigt. Zur übersichtlicheren Darstellung wurden die Winkel jeweils auf den kritischen Winkel mit $\xi = 0$ normiert. In Abhängigkeit von der Dissoziationsgeschwindigkeit erhält man eine unterschiedliche Abnahme des kritischen Winkels mit zunehmender Elliptizität. Es zeigt sich, daß für die größere Dissoziationsgeschwindigkeit mit zunehmender Elliptizität eine langsamere Abnahme erfolgt. Daraus läßt sich qualitativ schließen, daß für ein schnell

4. Ionisations- und Dissoziationsdynamik von H_2/D_2 in intensiven Lichtfeldern

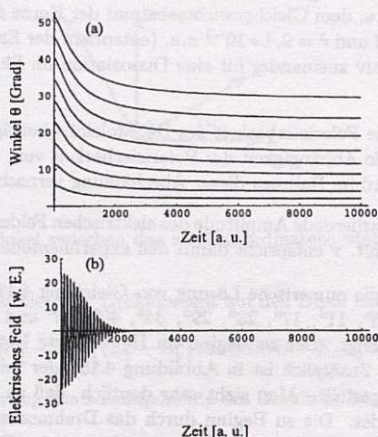


Abbildung 4.15.: (a) Ausrichtung des Dipols im elektrischen Feld einer Lichtwelle für verschiedene Anfangswinkel $\Theta(t=0)$. (b) Elektrisches Feld der Lichtwelle mit einer Pulsdauer (FWHM der Intensität) von 30 fs

dissoziierendes System, wie zum Beispiel H_2^+ nach der Coulomb-Explosion⁵, eine langsamere Abnahme der Ausbeute mit zunehmender Elliptizität zu erwarten ist. Dies ist in Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Damit zeigt sich, daß durch die Anregung mit elliptisch polarisiertem Licht eine Ausrichtung von Molekülen im Laserfeld sehr genau untersucht werden kann.

⁵Da nach der Coulomb-Explosion von H_2^+ kein Elektron mehr am Kern verbleibt, kann kein Drehmoment mehr auf das „Molekül“ durch ein induziertes Dipolmoment ausgeübt werden. Die Dissoziation durch Coulomb-Explosion erfolgt jedoch in mehreren Schritten. Nach der Photoionisation von H_2 erfolgt durch eine weitere Anregung eine Dissoziation von H_2^+ . Bei der Dissoziation durchläuft das Molekül den Bereich von Kernabständen, in dem die ladungsresonante Erhöhung der Ionisation auftreten kann. Dort kommt es zu einer weiteren Ionisation des Systems. Die Rechnungen haben gezeigt, daß nur in den ersten Oszillationsperioden ein Einfluß des Feldes zu sehen ist, so daß eine Ausrichtung des Moleküls vor dem zweiten Photoionisationsschritt durchaus realistisch ist und qualitativ mit dem vorliegenden Modell beschrieben werden kann.

4.2. Pump-Probe Untersuchungen

In den nun folgenden Abschnitten wird die Dynamik der Dissoziation von H_2^+/D_2^+ nach der Wechselwirkung mit intensivem Licht untersucht. Das Ziel dieser Untersuchungen ist es, den Dissoziationsmechanismus zu verstehen und damit im nächsten Schritt Informationen über die Kernwellenfunktion zu erhalten.

4.2.1. Pump-Probe Untersuchungen mit 80 fs Laserpulsen

Abbildung 4.16 zeigt die Verteilung der kinetischen Energie von D^+ Photoionen nach der Wechselwirkung mit zwei Laserpulsen für verschiedene Verzögerungszeiten τ zwischen dem ersten (Pumppuls) und dem zweiten Laserpuls (Probepuls). Der experimentelle Aufbau ist in Kapitel 3 beschrieben. Die Laserpulse (Lasersystem I) wurden in einem Michelson-Interferometer erzeugt, dessen einer Arm in der Länge variabel ist, um die gewünschte Verzögerungszeit τ im Bereich von 0 fs bis 300 fs einzustellen. Die Spitzenintensitäten des Pump- und Probepulses betrugen $I \approx 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Beide Pulse waren parallel zur Spektrometerachse linear polarisiert. Die verschiedenen Verzögerungszeiten τ sind in den Spektren in Abbildung 4.16 vermerkt. Sie wurden über 10000 bis 55000 Laserschüsse integriert. Die x-Achse der Spektren in 4.16 zeigt die kinetische Energie der D^+ Ionen im Schwerpunktsystem des D_2 Moleküls.

Die Verteilung der kinetischen Energie der Ionen besteht aus einer zeitunabhängigen und einer zeitabhängigen Komponente. Die zeitabhängige Struktur in Abbildung 4.16 ist eine Linie, die sich in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit τ bewegt. In Abbildung 4.16 ist diese Linie mit einem Pfeil in den entsprechenden Spektren gekennzeichnet. Für kleine Verzögerungszeiten fällt diese Linie mit der breiten Verteilung, die ein Maximum bei $E_{\text{kin}} \approx 2 - 3 \text{ eV}$ aufweist, zusammen. Mit wachsender Verzögerungszeit verschiebt sie sich zu kleinen Energien, bis sie schließlich für $\tau \geq 300 \text{ fs}$ mit der Linie bei 0,5 eV zusammenfällt. Zusätzlich zur Verschiebung der Linie ändert sich die Linienbreite. Bei Vergrößerung der Verzögerungszeit nimmt die Linienbreite ab.

Die zeitunabhängige Struktur besteht aus zwei Linien mit Energien kleiner $E_{\text{kin}} \approx 1 \text{ eV}$ und einer breiten Verteilung zwischen $E_{\text{kin}} \approx 1,5 \text{ eV} - 4 \text{ eV}$. Sie ist aus den vorangegangenen Experimenten (siehe Abschnitt 4.1) bekannt. Die Veränderungen in der Höhe der zeitunabhängigen Strukturen ist auf die Überlappung des Pump- und Probepulses und der damit verbundenen Erhöhung der wirksamen Lichtintensität zurückzuführen.

Der Mechanismus, der zu der zeitabhängigen Struktur führt, läßt sich durch ihre Abhängigkeit von der Verzögerungszeit des Probepulses identifizieren. Für große Verzögerungszeiten fällt die zeitabhängige Linie mit der Linie bei $E_{\text{kin}} = 0,5 \text{ eV}$ zusammen. Dies legt die Vermutung nahe, daß es sich bei den D^+ Ionen in der zeitabhängigen Struktur, um Ionen handelt, die aus der Dissoziation im Floquet 2-Photonen Kanal stammen. Durch eine Anregung dieser dissoziierenden D_2^+ Ionen im Probepuls kommt es zu einer Erhöhung ihrer kinetischen Energie und damit zu einer Verschiebung der

4. Ionisations- und Dissoziationsdynamik von H_2/D_2 in intensiven Lichtfeldern

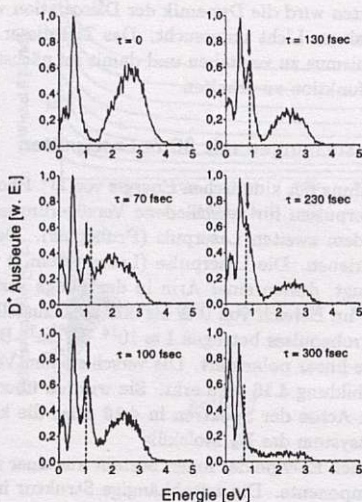


Abbildung 4.16.: Verteilung der kinetischen Energie der D^+ Ionen nach der Wechselwirkung mit zwei identischen Laserpulsen für verschiedene Verzögerungszeiten τ zwischen den Pulsen ($\lambda = 790$ nm, $\tau_p = 80$ fs, $I \approx 10^{14}$ W/cm²). Die von der Verzögerungszeit abhängige Struktur ist durch einen Pfeil markiert.

Linie im Energiespektrum.

Der Endzustand nach der Anregung durch den Probepuls lässt sich durch den Kernabstand R zum Zeitpunkt der Anregung durch den Probepuls bestimmen. R lässt sich, wie folgt, abschätzen. Im Floquet 2-Photonen Kanal beträgt die kinetische Energie $E_{kin} = 530$ meV. Dies entspricht einer Überschußenergie von $E_{ex} = 1.06$ eV.

$$D_2^+ + 2\hbar\omega \rightarrow D^+ + D(1s) + E_{ex} \quad (4.18)$$

Die Endgeschwindigkeit v_r für $R \rightarrow \infty$ des D^+ Ions relativ zum D Atom ist gegeben durch:

$$v_r = \sqrt{2E_{ex}/\mu}, \quad (4.19)$$

mit μ als reduzierte Masse des Systems bestehend aus den beiden Deuteronen. Der internukleare Abstand R_p zum Zeitpunkt der Anregung durch den zweiten Laserpuls (Probepuls) kann mit Hilfe der Annahme abgeschätzt werden, daß nach der Bildung von D_2^+ durch Photoionisation nahe dem Gleichgewichtszustand von D_2 ($R_0 = 1,4$ a.u.) die Dissoziation im Floquet 2-Photonen Kanal von Anfang an ohne Beschleunigung mit der Geschwindigkeit v_r erfolgt. Der Kernabstand zum Zeitpunkt der Anregung durch den Probepuls ist dann gegeben durch:

$$R_p = R_0 + \tau v_r. \quad (4.20)$$

Mit Gleichung 4.20 erhält man zum Beispiel für $\tau = 100$ fs einen Abstand $R_p \approx 28$ a.u.

Das D_2^+ Molekülion dissoziiert auf den Potentialkurven, die durch die elektronischen Zustände $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ gegeben sind. Bei $R \approx 5$ a.u. bilden diese Zustände aufgrund des Laserlichtes ein Paar resonant gekoppelter Zustände. Für größere Abstände $R > 10$ a.u. sind diese Potentiale flach und entkoppelt, so daß das molekulare System in diesem Bereich praktisch ohne Beschleunigung mit der konstanten Endgeschwindigkeit v_r dissoziiert (siehe Abbildung 2.8 in Abschnitt 2.4.2). Für Verzögerungszeiten $\tau > 100$ fs ist somit die oben gemachte Approximation erfüllt, da auf dem größten Teil des von den Kernen zurückgelegten Weges aufgrund der flachen Potentiale keine Beschleunigung erfolgt.

Die beobachtete Erhöhung der kinetischen Energie durch Anregung des dissoziierenden Moleküls mit Hilfe des Probepulses ist nur durch die Coulomb-Abstoßungskraft der beiden Kerne möglich. Die Abstoßung der Kerne ist nur signifikant, wenn das System ionisiert wird oder die Anregung in einen gebundenen Zustand des D_2^+ Ions stattfindet, in dem die Ausdehnung der Wellenfunktion des Elektrons in der Größenordnung des internuklearen Abstandes ist, d.h. ≈ 28 a.u. im Durchmesser für eine Verzögerungszeit von $\tau = 100$ fs. Angesichts der Laserintensitäten in diesem Experiment ist die Photoionisation der wahrscheinlichere Prozeß.

Für $R > 10$ a.u. sind die Bindungskräfte in den elektrischen Anfangszuständen $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ vernachlässigbar klein. In diesem Bereich ist das verbleibende Elektron an einem der beiden Kerne lokalisiert. Dies bedeutet, daß das Molekül aus einem Grundzustandsatom $D(1s)$ und einem D^+ Ion besteht. Das Ion beeinflusst den Grundzustand des neutralen Atoms nur unwesentlich. Das Ionisationspotential des Systems ist damit gegeben durch:

$$I_p(R) = I_{p0} + \frac{e^2}{R}, \quad (4.21)$$

wobei I_{p0} das Ionisationspotential des neutralen Atoms im Grundzustand ($I_{p0} = 13,6$ eV) und e^2/R die Coulomb-Abstoßungsenergie der beiden Ionen im Abstand R ist. Für den Fall von Deuterium variiert das Ionisationspotential I_p zwischen 15 eV (Verzögerungszeit 70 fs) und 14 eV (Verzögerungszeit 300 fs). Bei der Photoionisation des dissoziierenden Moleküls ändert sich die Geschwindigkeit der Kerne nicht, da es sich um einen instanta-

nen Prozess bei einem festen Kernabstand handelt (Franck-Condon-Prinzip). Die Summe der kinetischen Energien der beiden D^+ Ionen im Experiment ist daher die Summe aus der Überschußenergie des Dissoziationsprozesses im Floquet 2-Photonen Kanal ($E_{\text{ex}} = 1,06 \text{ eV}$) und der Coulomb-Abstoßungsenergie e^2/R der Kerne zum Zeitpunkt der Photoionisation. Die kinetische Energie eines D^+ Ions ist damit:

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2}(E_{\text{ex}} + \frac{e^2}{R}). \quad (4.22)$$

Für die eingestellten Verzögerungszeiten läßt sich nun die kinetische Energie der D^+ Ionen nach der Ionisation durch den Probepuls bestimmen. Die Werte liegen zwischen $\approx 1,2 \text{ eV}$ ($\tau = 70 \text{ fs}$) und $\approx 0,7 \text{ eV}$ ($\tau = 300 \text{ fs}$). In Abbildung 4.16 sind für die verschiedenen Verzögerungszeiten die Positionen der berechneten kinetischen Energien für eine Photoionisation des dissoziierenden Systems im Abstand $R_p = R_0 + v_r \tau$ eingezeichnet (vertikale gestrichelte Linie). Die Übereinstimmung zwischen Experiment und Rechnung ist gut, besonders für große Verzögerungszeiten erhält man eine ausgezeichnete Übereinstimmung. Die schlechtere Übereinstimmung für kürzere Verzögerungszeiten ist wahrscheinlich auf die Näherung bei der Bestimmung von R_p zurückzuführen. Auch der Fehler bei der Bestimmung der Verzögerungszeit ($\pm 15 \text{ fs}$) trägt zur Abweichung für kleine Verzögerungszeiten verstärkt bei. Für große Verzögerungszeiten ist dieser Fehler nicht gravierend.

Die vorangegangene Diskussion zeigt, daß die Photoionisation des dissoziierenden Moleküls durch den Probepuls offensichtlich für die zeitabhängige Struktur in der Verteilung der kinetischen Energie verantwortlich ist. Der ganze Mechanismus ist in Abbildung 4.17 noch einmal in einer Darstellung mit den entsprechenden adiabatischen Potentialkurven schematisch dargestellt. Gezeigt sind die für den Prozess relevanten diabatischen Zustände $1\sigma_g$, $1\sigma_g - 2\hbar\omega$ und $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$ (gestrichelte Linien) und die adiabatischen Potentiale (durchgezogene Linie) im externen intensiven Lichtfeld. Vermiedene Kreuzungen entstehen für die adiabatischen Potentiale an den Kreuzungspunkten der diabatischen Potentiale.

Nach der Anregung durch den Pumpuls wird zunächst D_2^+ am Gleichgewichtsabstand $R = 1,4 \text{ a.u.}$ von D_2 gebildet und es kommt zu einer weiteren Anregung durch eine 3-Photonen Absorption in das Dissoziationskontinuum des $2p\sigma_u$ Zustandes in der Nähe der Kreuzung der diabatischen Zustände $1\sigma_g$ und $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$. Während der Dissoziation bleibt das Molekül auf dem adiabatischen Potential, das die $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$ mit der $1\sigma_g - 2\hbar\omega$ Kurve bei großen Kernabständen verbindet. Dabei kommt es zu einer stimulierten Emission eines Photons. Der Grund hierfür ist die große Energielücke durch die starke 1-Photon Kopplung der $1\sigma_g - 2\hbar\omega$ und $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$ diabatischen Zustände im intensiven Lichtfeld zum Zeitpunkt der Dissoziation. Der Probepuls trifft das im Floquet 2-Photonen Kanal dissoziierende Molekül und ionisiert es. Dies entspricht einer Projektion der Kernwellenfunktion auf die repulsive Coulomb-Potentialfläche. Bei dieser Projektion ändert sich der Bewegungszustand der Kerne (Franck-Condon-Prinzip)

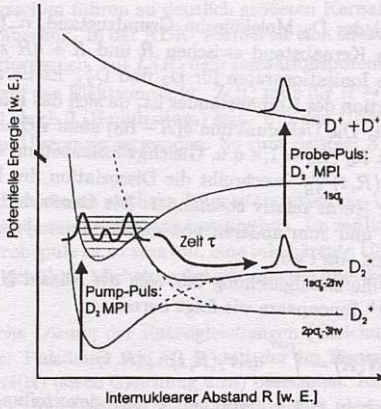


Abbildung 4.17.: Schematische Darstellung des zeitlichen Verlaufs im Potentialbild

nicht. Da die Kernbewegung während der in diesem Experiment benutzten Dauer der Lichtpulse nicht vernachlässigbar klein ist, erfolgt diese Projektion nicht instantan. Bei einer Geschwindigkeit $v_r \approx 14000$ m/s bewegen sich die Kerne während der Pulsdauer von 80 fs ca. 20 a.u. weit. Daraus resultiert eine Verbreiterung der Verteilung der kinetischen Energie der D^+ Ionen. Sie ist im Bereich kleiner Kernabstände stärker ausgeprägt, da hier die Steigung des repulsiven Coulombpotentials der Kerne größer ist. Diese Verbreiterung für kleine Kernabstände (kleine Verzögerungszeiten) ist auch in den experimentellen Daten beobachtbar. Desweiteren besitzt das dissoziierende Wellenpaket eine räumliche Ausdehnung, die auch bei einer instantanen Projektion auf das repulsive Coulomb-Potentialfläche zu Verbreiterung in der Verteilung der kinetischen Energie der der D^+ Ionen führt. Diese Verbreiterung ist jedoch wesentlich geringer und wird im folgenden Abschnitt näher behandelt.

Die folgende Simulation ermöglicht die Hauptmerkmale der experimentellen Daten zu erklären. In dieser Simulation wird die Photoionisation von D_2 und D_2^+ durch ein Ratenleichungsmodell und die Dissoziation durch einfache klassische Mechanik beschrieben. Die das System beschreibenden zwei Ratengleichungen sehen wie folgt aus:

$$\frac{dn}{dt} = -W_1(t)n(t) \quad \text{und} \quad (4.23)$$

$$\frac{\partial n_+}{\partial t} + v_r(R, t) \frac{\partial n_+}{\partial R} = -W_2(R, t)n_+(r, t) + \delta(R - R_0)W_1(t)n(t), \quad (4.24)$$

dabei ist $n(t)$ die Anzahl der D_2 Moleküle im Grundzustand, $n_+(R, t)$ die Anzahl der D_2^+ Moleküle mit einem Kernabstand zwischen R und $R + dR$ zum Zeitpunkt t . $W_1(t)$ und $W_2(R, t)$ sind die Ionisationsraten für D_2 und D_2^+ . Es ist zu beachten, daß die Ionisationsrate eine Funktion des Kernabstandes ist, da sich das Ionisationspotential mit dem Kernabstand ändert. Die Deltafunktion $\delta(R - R_0)$ stellt sicher, daß D_2^+ nur bei einem Kernabstand von $R = R_0$ ($R_0 = 1,4$ a.u. Gleichgewichtsabstand des D_2 Moleküls) gebildet wird. Der Term $v_r(R, t) \frac{\partial n_+}{\partial R}$ beschreibt die Dissoziation des Moleküls mit der Geschwindigkeit $v_r(R, t)$ der Kerne relativ zueinander. Die Geschwindigkeit hängt zum einem vom Kernabstand R und zum anderen von der zeitabhängigen Amplitude des Lichtfeldes und damit explizit von t ab.

Durch die Lösung der Differentialgleichung läßt sich die Anzahl $N(R)$ der zwischen R und $R + dR$ gebildeten D^+ Ionenpaare wie folgt berechnen:

$$N(R) = \int_{-\infty}^{\infty} dt W_2(R, t) n_+(R, t). \quad (4.25)$$

Diese Verteilung läßt sich in eine entsprechende Energieverteilung transformieren. Der Zusammenhang zwischen kinetischer Energie und Kernabstand zum Zeitpunkt der Photoionisation durch den zweiten Puls ist gegeben durch:

$$E_{kin} = \frac{1}{2} (E_{ex} + \frac{e^2}{R}). \quad (4.26)$$

Damit erhält man als Verteilungsfunktion der kinetischen Energie:

$$N_k(E_{kin}) = N(R(E_{kin})) \frac{dR}{dE_{kin}}. \quad (4.27)$$

Das nicht triviale Problem besteht in der Bestimmung der Geschwindigkeit $v_r(R, t)$. Vor allem für Kernabstände im Bereich, wo es zu einer starken Kopplung der verschiedenen Potentialkurven kommt, ist die Berechnung sehr aufwendig. Der einfachere, hier eingeschlagene Weg besteht darin, die Geschwindigkeit durch die Endgeschwindigkeit (siehe Gleichung 4.19) $v_r = \sqrt{2E_{ex}/\mu}$ (mit $E_{ex} = 1,06$ eV) zu approximieren. Diese Näherung war bereits bei der Bestimmung der Maxima für große Verzögerungszeiten sehr erfolgreich und sollte damit eine hinreichend gute Näherung darstellen. Die Ionisationsrate $W_1(t)$ für D_2 läßt sich durch die ADK (Ammosov-Delone-Krainov) Tunnelrate [5] annähern. Der strenge Gültigkeitsbereich dieser Formel ist auf $\gamma < 1$ (Keldysh-Parameter siehe Abschnitt 2.2.2) beschränkt. In diesem Experiment ergibt sich ein $\gamma \approx 1.1$, damit bildet die ADK-Formel noch eine akzeptable Näherung. Die Ionisationsrate $W_2(R, t)$ für D_2^+ kann ebenfalls durch die ADK Tunnelrate angenähert werden. Die Änderung des Ionisationspotentials mit dem Kernabstand R führt zu einer expliziten R -Abhängigkeit der Ionisationsrate. Das Ionisationspotential für die numerische Berechnung wurde gleich dem Ionisationspotential des ungestörten $1s\sigma_g$ Zustandes gesetzt, das für große Kernabstände ($R > 10$ a.u.) eine gute Näherung ist. Die im Experiment

gewählten Verzögerungszeiten führen zu deutlich größeren Kernabständen und rechtfertigen somit die obige Näherung. In der ADK-Formel ist eine effektive Hauptquantenzahl $n^* = Z(R)/\sqrt{2I_p(R)}$ erforderlich, mit $I_p(R)$ dem Ionisationspotential und $Z(R)$ der effektiven Kernladung, die auf das Elektron wirkt. $Z(R)$ muß für $R \rightarrow \infty$ gleich 1 (Deuteriumatom) und für $R \rightarrow 0$ gleich 2 (Heliumatom) sein. Für den Übergangsbereich kann man willkürlich einen sanften Übergang verwenden. So zum Beispiel $Z(R) = 1 + \exp(-R/\bar{R})$, mit $\bar{R} = 5,8 \text{ a.u.}$

Die im Experiment gemessene zeitliche Intensitätsverteilung in den Lichtpulsen läßt sich am besten durch eine Lorentzverteilung beschreiben. Im zeitlichen Überlappungsbereich zwischen Pump- und Probepuls ist es sinnvoll, eine inkohärente Überlagerung zu wählen, da das im Experiment gewählte Michelson Interferometer über keine interferometrische Stabilität verfügte.

Durch die numerische Lösung der Ratengleichungen (Gleichung 4.23 und 4.24) mit $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$, einer Pulsdauer von 80 fs und der im Experiment gewählten Verzögerungszeit läßt sich $N(R)$ (siehe Gleichung 4.25) berechnen. Abbildung 4.18a zeigt die Anzahl der gebildeten D^+ Ionenpaare $N(R)$ in Abhängigkeit vom Abstand R . Die daraus folgende Verteilung der kinetischen Energie $N_k(E)$ nach Gleichung 4.27 ist in Abbildung 4.18b dargestellt. Die berechnete Verteilung der kinetischen Energie in Abbildung 4.18b

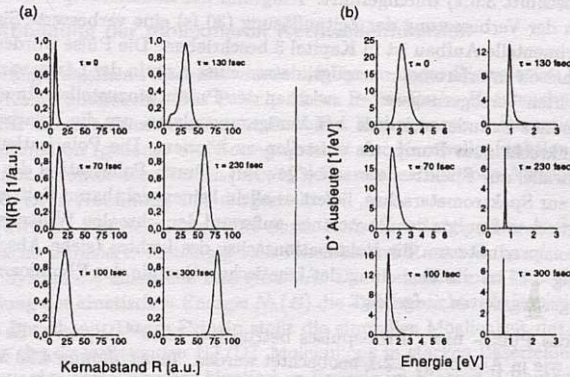


Abbildung 4.18.: (a) Berechnete Verteilung der Kernabstände für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls, (b) Berechnete Verteilung der kinetischen Energie der D^+ Ionen (näheres siehe Text)

ist in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten für Verzögerungszeiten $\tau \geq 100$ fs. Die unzureichende Übereinstimmung für $\tau = 70$ fs resultiert auf dem Fehler bei der Bestimmung der Verzögerungszeit und der Näherung zur Bestimmung der Dissoziationsgeschwindigkeit v_r . Ein weiterer Grund ist die für bestimmte Kernabstände auftretende Erhöhung der Photoionisation durch CREI, die unter Umständen bestimmte Kernabstände bevorzugt und in diesem einfachen Modell nicht berücksichtigt ist. Die Änderung der Linienbreite in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit läßt sich in den experimentellen Daten finden. Sie ist auf die stärkere Steigung des Coulomb-Potentials für kleine Kernabstände zurückzuführen.

Abschließend läßt sich feststellen, daß die zeitabhängige Struktur durch eine Photoionisation des dissoziierenden Moleküls und der anschließenden Coulomb-Explosion zu erklären ist und mit einem einfachen numerischen Modell nachvollziehbar ist.

4.2.2. Hochauflösende Pump-Probe Untersuchungen

Um die Zeitauflösung zu erhöhen, wurden die folgenden Experimente mit dem Lasersystem II (siehe Abschnitt 3.6.2) durchgeführt. Aufgrund der höheren Repetitionsrate ermöglicht es neben der Verbesserung der Zeitauflösung (30 fs) eine verbesserte Signalstatistik. Der experimentelle Aufbau ist in Kapitel 3 beschrieben. Die Pulse wurden wie zuvor in einem Michelson Interferometer erzeugt, dessen einer Arm in der Länge variabel ist, um die gewünschten Verzögerungszeiten zwischen den Pulsen einzustellen. In einem Arm des Interferometers befindet sich eine $\lambda/4$ Verögerungsplatte, um die Polarisation des Probepulses senkrecht zum Pumpimpuls einstellen zu können. Die Polarisation des Pumpimpulses war parallel zur Spektrometerachse gewählt. Durch Polarisation des Probepulses senkrecht zur Spektrometerachse, liefert er allein keinen sichtbaren Beitrag zur Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen aufgrund der schmalen Winkelverteilung der Dissoziationsprodukte um die Polarisationsachse des Lichtes (siehe Abschnitt 4.1.3). In Abbildung 4.19 ist die Verteilung der kinetischen Energie der Photoionen für verschiedene Verzögerungszeiten aufgezeigt.

Die Intensität des Pump- bzw. Probepulses betrug $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Es kann dasselbe Verhalten wie in Abschnitt 4.2.1 beobachtet werden. In Abbildung 4.20 ist die Verteilung der kinetischen Energie nach der Wechselwirkung mit Pump- und Probepuls (Verzögerungszeit $\tau = 70$ fs) (a), nur mit dem Pumpimpuls (b) und nur mit dem Probepuls (c) dargestellt. Der Probepuls alleine liefert keinen signifikanten Beitrag. Der Einschub in Abbildung 4.20 zeigt die Differenz aus Verteilung (a) und (b) ((c) liefert keinen signifikanten Beitrag). Man sieht deutlich daß der Ursprung der zeitabhängigen Struktur der Floquet 2-Photonen-Kanal ist.

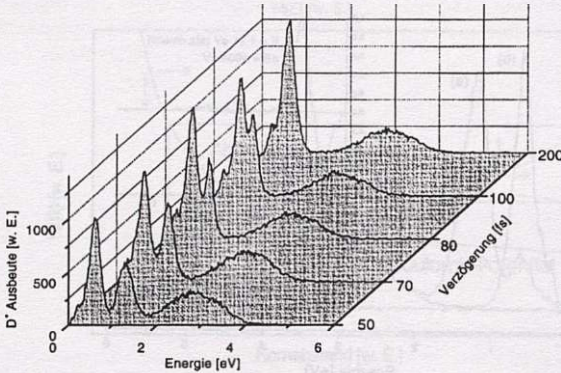


Abbildung 4.19.: Verteilung der kinetischen Energie für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls (näheres siehe Text)

4.2.3. Abbildung der molekularen Kernwellenfunktion

In dem vorangegangenen Abschnitt wurde die Dynamik der Dissoziation im Floquet 2-Photonen-Kanal untersucht. Das Prinzip dieser Pump-Probe Untersuchung ermöglicht es nun auch unter bestimmten experimentellen Bedingungen Informationen über die Kernwellenfunktion (genauer das Betragsquadrat der Kernwellenfunktion) zu erhalten. Diese Technik ist unter dem Namen [102, 103] Kernwellenfunktions-Abbildung⁶ bekannt. Das Prinzip ist in Abbildung 4.21 dargestellt.

Dabei wird die Teilchendichte $N(R)$ durch Ionisation des Systems, auf die Coulomb-potentialfläche projiziert. Abhängig vom Kernabstand R zum Zeitpunkt der Ionisation erhält das System die kinetische Energie e^2/R . Das bedeutet, man kann durch Messung der Verteilung der kinetischen Energie $N_k(E)$ die Teilchendichte als Funktion vom Kernabstand R berechnen. Dieses Prinzip stellt die einmalige Möglichkeit dar, die Kernwellenfunktion des dissoziierenden H_2^+/D_2^+ Molekülions in starken Laserfeldern zu messen. Versuche aus der Verteilung der kinetischen Energie im Floquet 2-Photonen Kanal auf die Kernwellenfunktion des H_2^+/D_2^+ Molekülions in starken Laserfeldern zu ziehen, waren bisher nicht erfolgreich. Die Abbildung der Kernwellenfunktion stellt damit eine neue Möglichkeit dar, direkt die Dynamik der Kernwellenfunktion in starken Laserfeldern zu

⁶Nuclear-Wavefunction-Imaging

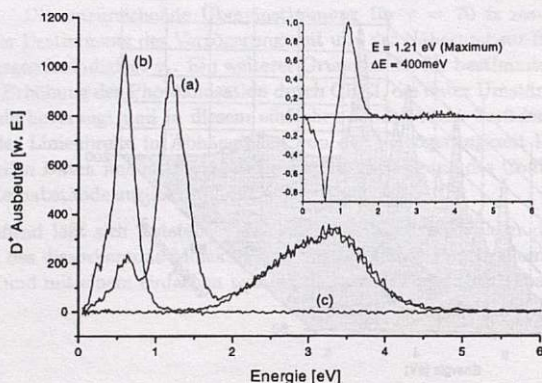


Abbildung 4.20.: Verteilung der kinetischen Energie nach der Wechselwirkung mit Pump- und Probepuls (Verzögerungszeit $\tau = 70 \text{ fs}$) (a), nur mit dem Pumpimpuls (b), bzw. nur mit dem Probepuls (c). Der Einschub zeigt die Differenz aus Verteilung (a) und (b) ((c) liefert keinen signifikanten Beitrag)

messen.

Die Voraussetzung für diese Technik ist die nahezu instantane Photoionisation durch den Probepuls. Dies bedeutet, daß die Dauer der Photoionisation auf einer Zeitskala erfolgen muß, die deutlich kürzer ist als die Zeitskala, auf der die Bewegung der Kerne abläuft. In Abbildung 4.22 ist hierzu die Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit von der Zeit im Laserpuls aufgetragen. Zusätzlich ist der zeitliche Intensitätsverlauf im Laserpuls (Gaußpuls mit einer Pulsdauer von 30 fs) eingezeichnet. Man sieht, daß die Zeitskala für die Photoionisation deutlich unter der Zeitskala des Laserpulses liegt. Die Ionisationswahrscheinlichkeit steigt von 0,05 auf 0,95 innerhalb von $\leq 5 \text{ fs}$ an. Unter der Annahme, daß der dominante Beitrag zur Ionenausbeute aus dem Sättigungsbereich für Ionisation im Laserfokus stammt, erfolgt die Projektion aufgrund der Ionisation in einem Zeitbereich von weniger als 5 fs.⁷

⁷Aufgrund der Intensitätsverteilung im Laserfokus verschiebt sich das Zentrum dieses Zeitbereiches auf der ansteigenden Flanke des Pulses in Abhängigkeit vom Ort im Fokus. Der spätere Vergleich mit den experimentellen Daten zeigt jedoch, daß der Zeitbereich für die Photoionisation auf wenige Femtosekunden beschränkt ist. Dies läßt sich dadurch erklären, daß nur ein bestimmter Intensitätsbereich

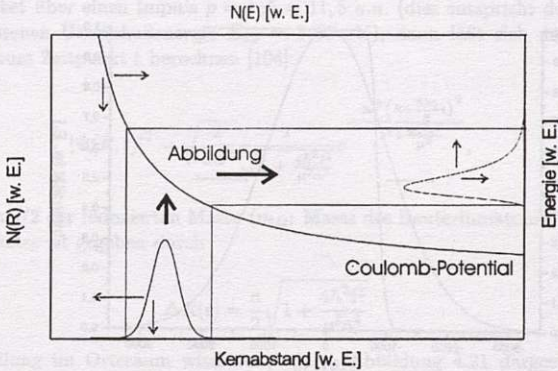


Abbildung 4.21.: Prinzip des Mechanismus zur Abbildung der Kernwellenfunktion (Erläuterungen siehe Text). Die grauen Pfeile verweisen auf die zu den Kurven entsprechenden Achsen

Die Ortsauflösung ist durch die Bewegung der Kerne auf der Zeitskala für die Photoionisation bestimmt. Für D_2^+ beträgt die Dissoziationsgeschwindigkeit $v_r \approx 14000 \text{ m/s}$ für Kernabstände $\geq 10 \text{ a.u.}$ Damit bewegen sich die Kerne innerhalb von 5 fs um $1,4 \text{ a.u.}$ relativ zueinander. Dieser Wert muß nun mit der örtlichen Ausdehnung des Wellenpaketes zum Zeitpunkt der Photoionisation durch den Probepuls verglichen werden.

Eine Abschätzung für die räumliche Ausdehnung der Kernwellenfunktion kann, wie folgt, gemacht werden. Die Photoionisation durch den Pumpuls erzeugt D_2^+ nahe am Gleichgewichtsabstand $R_0 = 1,4 \text{ a.u.}$ von D_2 . Nach dem Franck Condon Prinzip erhält man die Projektion des Grundzustandswellenpaketes auf den elektronischen Grundzustand des D_2^+ Moleküliions. Dieser Zustand dissoziiert anschließend im Floquet 2-Photonen Kanal.

Die Form der Wellenfunktion und deren Propagation in den zeitabhängigen Potentialen läßt sich nur durch die numerische Lösung der entsprechenden Schrödinger Gleichung erreichen.

Der einfachere Weg, um eine Vorstellung von der Wellenfunktion zu erhalten, besteht

im Laserfokus für die beobachtete zeitabhängige Struktur verantwortlich ist.

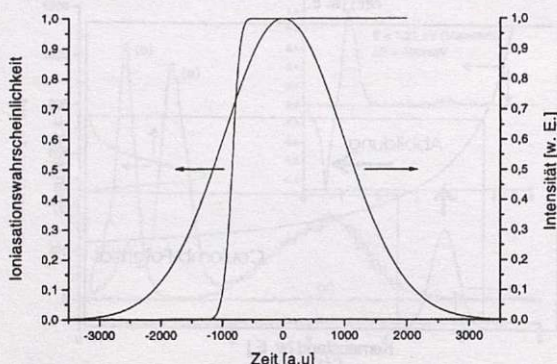


Abbildung 4.22.: Berechnete Ionisationswahrscheinlichkeit von D in Abhängigkeit von der Zeit mit Hilfe der ADK-Formel (näheres siehe Text), zusätzlich eingezeichnet die Einhüllende der Intensitätsverteilung des Laserpulses.

darin die folgenden Näherungen durchzuführen:

- Ersetzen des Wellenpaketes im elektronischen Grundzustand von D_2^+ durch die Gauß'sche Wellenfunktion des D_2 Vibrationsgrundzustandes im elektronischen Zustand $X^1\Sigma_g^+$.
- Vernachlässigung aller vorhandenen Potentiale.
- Das Wellenpaket erhält als Startgeschwindigkeit die Geschwindigkeit $2 \cdot v_r$, die der Dissoziationsendgeschwindigkeit entspricht. Diese Geschwindigkeit ist aus der Verteilung der kinetischen Energien bekannt und beträgt: $v_r = 14000 \text{ m/s}$.

Die Rechtfertigung für die letzten beiden Annahmen liegt in der Tatsache begründet, daß für $R > 10 \text{ a.u.}$ die Potentiale praktisch flach sind und somit keine weitere Beschleunigung erfolgt.

Der Vibrationsgrundzustand in der harmonischen Näherung hat die Form einer Gauß-verteilung. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung $|\Psi(R,0)|^2$ läßt sich damit schreiben als:

$$|\Psi(R,0)|^2 = \sqrt{\frac{2}{\pi a^2}} e^{-2R^2/a^2}. \quad (4.28)$$

Für den Vibrationsgrundzustand des $X^1\Sigma_g^+$ Zustandes gilt $a = 0,28$ a.u. [86]. Verfügt das Wellenpaket über einen Impuls $p = k_0\hbar = 11,6$ a.u. (dies entspricht der im Experiment gemessenen Überschußenergie $E_{ex} = 1,06$ eV), dann läßt sich das Gaußsche Wellenpaket zum Zeitpunkt t berechnen [104]:

$$|\Psi(R, t)|^2 = \sqrt{\frac{2}{\pi a^2}} \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{4\hbar^2 t^2}{\mu^2 a^4}}} e^{-\frac{2a^2 \left(R - \frac{\hbar k_0}{\mu} t\right)^2}{a^4 + \frac{4\hbar^2 t^2}{\mu^2}}}, \quad (4.29)$$

mit $\mu = m_D/2$ der reduzierten Masse (m_D : Masse des Deuteriumatoms). Die Breite des Wellenpaketes ist gegeben durch

$$\Delta R(t) = \frac{a}{2} \sqrt{1 + \frac{4\hbar^2 t^2}{\mu^2 a^4}}. \quad (4.30)$$

Die Verteilung im Ortsraum wird nun, wie in Abbildung 4.21 dargestellt, durch den zweiten Ionisationsschritt in den Energieraum (Verteilung der kinetischen Energie) transformiert. Die kinetische Energie der Ionen ist gegeben durch:

$$E_{kin} = 1/2(E_{ex} + e^2/R). \quad (4.31)$$

Die Wahrscheinlichkeitsverteilung im Energieraum ist gegeben durch:

$$N_k(E_{kin}, \tau) = |\Psi(R(E_{kin}), t = \tau)|^2 \frac{dR}{dE_{kin}}. \quad (4.32)$$

Der Einschub aus Abbildung 4.23 ist in Abbildung 4.20 noch einmal vergrößert dargestellt. Er zeigt die Umverteilung der Ionenausbeute, wenn der Prodepuls die dissoziierenden D_2^+ Ionen photoionisiert. Die drei eingezeichneten Kurven zeigen die Projektion der berechneten Wellenfunktion nach der Zeit $\tau = 60$ fs (gestrichelte Kurve), $\tau = 65$ fs (gestrichelt-gepunktete Kurve) und $\tau = 70$ fs (gepunktete Kurve). Die Verzögerungszeit zwischen Pumpuls und Prodepuls betrug im Experiment 70 fs. Für die Berechnung der Propagationszeit kann diese Verzögerungszeit nur als Anhaltspunkt dienen, da unklar ist, in welchem Teil des Pumpulses D_2^+ gebildet wird und zu welchem Zeitpunkt im Prodepuls die Photoionisation des dissoziierenden Systems erfolgt. Wählt man eine Verzögerungszeit von 65 fs, so fallen die Maxima der berechneten und der gemessenen Kurve zusammen. Die Breite der berechneten und gemessenen Verteilungen sind in hervorragenden Übereinstimmung. Wie oben gezeigt, ist der Zeitdauer der Photoionisation im Bereich ≤ 5 fs. Die zwei Kurven in Abbildung 4.23 (gepunktet und gestrichelt) zeigen die Projektion des Wellenpaketes nach einer Propagationszeit von 60 fs bzw. 70 fs. Betrachtet man die beiden Kurven, so ist die Abweichung von den gemessenen Kurven nicht gravierend.

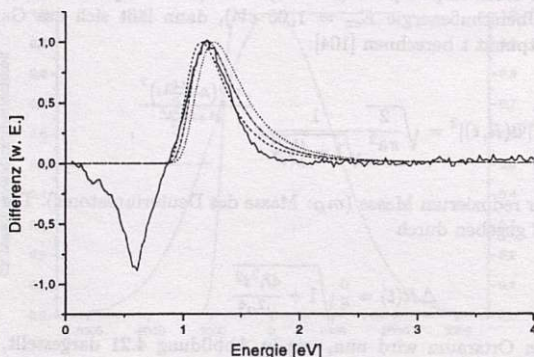


Abbildung 4.23.: Vergrößerte Abbildung des Einschubs aus Abbildung 4.20 (durchgezogene Linie), zusätzlich eingezeichnet befinden sich die Verteilung der kinetischen Energien der Gaußschen Wellenpakete für verschiedene Propagationszeiten (näheres siehe Text)

Die Abbildungsmethode in der vorliegenden Form ist sicherlich nicht perfekt, da das zeitliche Auflösungsvermögen noch nicht optimal ist. Die grobe Form des Wellenpaketes kann aber sicherlich abgeschätzt werden. Die Zeitauflösung ist derzeit nur ausreichend, um ein „unscharfes“ Abbild der Wellenfunktion zu erhalten. Dieses Abbild läßt in jedem Fall eine grobe Aussage über die Strukturen, wie zum Beispiel die Breite des Wellenpaketes zu.

Das Experiment zeigt jedoch zum ersten Mal, daß die Methode der Abbildung der Wellenfunktion für $\text{H}_2^+/\text{D}_2^+$ prinzipiell möglich ist. Die Weiterentwicklung der Lasersysteme wird die benötigte Zeitauflösung in absehbarer Zukunft zur Verfügung stellen, um damit den Weg zu Untersuchungen der Dissoziationsdynamik von H_2/D_2 weiter voranzubringen.

5. Ionisationsdynamik von Atomen in intensiven Lichtfeldern

Trotz intensiver Forschung ist die Bildung von mehrfach geladenen Ionen während der Wechselwirkung von Atomen mit intensiver Lichtstrahlung noch nicht verstanden (siehe Abschnitt 2.3). Die ersten Experimente zur Messung der Ionisationsdynamik von Atomen in starken Laserfeldern wurden unter anderem von L'Huillier et al.[105] durchgeführt. Spätere Pzessionsmessungen (z.B. [1, 34, 37]) zeigten, daß die Bildung von mehrfach geladenen Ionen in einem bestimmten Intensitätsbereich (unterhalb der Sättigungsintensität der einfachen Ionisation) nicht als sequentieller Prozeß beschrieben werden kann. Die vorhandenen Untersuchungen beschränkten sich auf die integrale Messungen der Ionenausbeute in Abhängigkeit von der Lichtintensität für verschiedene Parameter wie Wellenlänge, Elliptizität des Laserlichtes usw. Verschiedene nichtsequentielle Ionisationsmechanismen wurden zur Erklärung vorgeschlagen, die bereits in Abschnitt 2.3 näher beschrieben sind. Aus den in der Literatur vorliegenden Experimenten läßt sich keine eindeutige Entscheidung für einen der Mechanismen machen. Das im Folgenden beschriebene Experiment stellt eine erste differentielle Messung dar. Das Ziel dieser Untersuchung ist die Messung der Impulsverteilung der Ionen. Wie später gezeigt wird, lassen sich aus der Impulsverteilung der einfach und mehrfach geladenen Ionen Aussagen über den Ionisationsprozeß gewinnen. Dazu wurde die bereits bekannte Technik der COLTRIM Spektroskopie auf das Gebiet der Wechselwirkung von intensiver Lichtstrahlung mit Atomen übertragen und adaptiert. Diese Messungen wurden in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Ullrich (Universität Freiburg) durchgeführt.

5.1. Einführung in das Prinzip der COLTRIMS

COLTRIMS steht für Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy und ist eine experimentelle Technik [106], die in der Gruppe von Prof Ullrich (Universität Freiburg) und Prof. Schmidt-Böcking (Universität Frankfurt) entwickelt wurde. Sie wird dort unter anderem zur Untersuchung von Ionisation im Stoß zwischen Atomen und geladenen Teilchen eingesetzt.

Mit dieser Technik wird der Impuls des Ions gemessen. Bei der Anregung mit intensiven Lichtpulsen läßt sich aufgrund der Impulserhaltung, wie im Folgenden gezeigt

wird, eine Beziehung zwischen dem Impuls des Ions und der Summe der Impulse der Photoelektronen herleiten.

Zu Beginn, das heißt vor der Ionisation, kann man annehmen, daß der Impuls des Atoms gleich Null ist

$$\vec{p}_A = 0. \quad (5.1)$$

Nach der Ionisation von N Elektronen und der anschließenden Beschleunigung des Ions und der Elektronen im elektrischen Feld der Lichtwelle ist die Summe der Impulse des Ions \vec{p}_{Ion} und der N Photoelektronen $\sum_{i=1}^N \vec{p}_i$ gleich einem Impuls $\Delta \vec{p}_\gamma$, der durch die absorbierten Photonen auf das System übertragen wurde

$$\vec{p}_{Ion} + \sum_{i=1}^N \vec{p}_i = \Delta \vec{p}_\gamma. \quad (5.2)$$

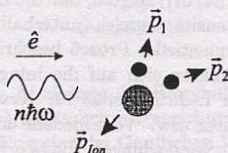


Abbildung 5.1.: Schematische Darstellung der Impulse eines Ions \vec{p}_{Ion} und zweier Elektronen \vec{p}_i nach der Doppelionisation durch Anregung mit einem intensiven Lichtpuls (links durch das oszillierende elektrische Feld einer Lichtwelle mit der Ausbreitungsrichtung \hat{e} angedeutet).

Der durch die absorbierten Photonen übertragene Impuls ist in Richtung der Ausbreitungsrichtung der Lichtwelle gerichtet. Dadurch ergibt sich für die Komponenten senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Lichtwelle eine eindeutige Beziehung zwischen dem Impuls der Ionen und dem Impuls der Elektronen. Für die Komponente parallel zur Ausbreitungsrichtung der Lichtwelle ist der Impuls der Elektronen gleich dem Impuls der Ionen bis auf den Impulsübertrag durch die vom System absorbierten Photonen. Da der durch die absorbierten Photonen hervorgerufenen Impulsübertrag sehr klein ist im Vergleich zu den gemessenen Impulsen,

$$|\Delta \vec{p}_\gamma| \leq 0,1 \text{ a.u.} \quad (5.3)$$

läßt sich Gleichung 5.2 in guter Näherung schreiben als:

$$\vec{p}_{Ion} = - \sum_{i=1}^N \vec{p}_i. \quad (5.4)$$

Aus Gleichung 5.4 folgt, daß der Impuls des Ions gleich dem Summenimpuls der freigesetzten Elektronen ist. Für die Einfachionisation bedeutet das, daß die im Experiment gemessene Impulsverteilung der Ionen genau der Impulsverteilung der Elektronen entspricht.

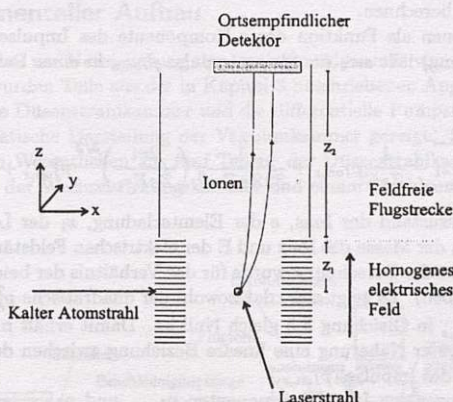


Abbildung 5.2.: Schematische Darstellung der COLTRIMS Methode. Ionen, die im Laserfokus erzeugt werden, werden durch ein schwaches homogenes elektrisches Feld im Bereich z_1 beschleunigt und fliegen dann ohne weitere Beschleunigung (feldfrei) in der Richtung zum ortsaufösenden Detektor (näheres siehe Text)

In Abbildung 5.2 ist schematisch die Funktionsweise der COLTRIM Spektroskopie gezeigt. In der Mitte des Detektors wird ein kalter Atomstrahl von einem fokussierten Laserstrahl gekreuzt. Im Laserfokus ist die Lichtintensität hoch genug, um mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit Ionen zu erzeugen. Der kalte Atomstrahl ist notwendig, um die in einem thermischen Gas (Gas bei Raumtemperatur) vorhandene Impulsverteilung zu verringern und so die Impulse, die im Ionisationsprozeß und der anschließenden Beschleunigung im Lichtfeld auf das Photoion übertragen werden, zugänglich zu machen. Ionen, die im Laserfokus erzeugt werden, werden zunächst über eine Länge z_1 in einem schwachen homogenen elektrischen Feld beschleunigt und fliegen anschließend feldfrei zum Detektor. Das Verhältnis der Abstände $\frac{z_1}{z_2} \approx \frac{1}{2}$ ist so gewählt, daß es zu einer Ort-Zeit-Fokussierung kommt. Ionen, die an verschiedenen Orten mit gleichem Impuls in z -Richtung starten, treffen nach der gleichen Flugzeit auf dem Detektor auf [106].

Durch die Messung des Auftreffpunktes auf dem ortsempfindlichen Detektor und der Flugzeit vom Entstehungsort zum Detektor lassen sich die Impulskomponenten in der Detektorebene (x- und y-Komponente des Impulsvektors \vec{p}_{Ion}) bestimmen. Aus der Flugzeit vom Entstehungsort bis zum Nachweis am Detektor läßt sich die z-Komponente des Impulsvektors $p_{Ion,z}$ berechnen.

Die Flugzeit der Ionen als Funktion der z-Komponente des Impulses $p_{Ion,z}$ (Anfangsimpuls in z-Richtung) läßt sich für kleine Impulse $p_{Ion,z}$ in einer Potenzreihe entwickeln. Man erhält:

$$T(p_{Ion,z}) = \sqrt{\frac{8m}{ZeE}} z_1 - \frac{1}{ZeE} p_{Ion,z} + \frac{1}{32ZeEm^3} \left(\frac{2m}{ZeEz_1} \right)^{3/2} p_{Ion,z}^4 + \dots, \quad (5.5)$$

mit Z dem Ladungszustand des Ions, e der Elementarladung, z_1 der Länge der Beschleunigungsstrecke, m der Masse des Ions und E der elektrischen Feldstärke in der Beschleunigungsstrecke. Bei der Berechnung wurde für das Verhältnis der beiden Abstände $\frac{z_1}{z_2} = \frac{1}{2}$ gewählt (siehe oben). Es zeigt sich, daß sowohl der quadratische $p_{Ion,z}^2$, als auch der kubische Term $p_{Ion,z}^3$ in Gleichung 5.5 gleich Null ist. Damit erhält man für kleine Impulse $p_{Ion,z}$ in sehr guter Näherung eine lineare Beziehung zwischen der Flugzeit T und der z-Komponente des Impulses $p_{Ion,z}$.

Die zwei dazu orthogonalen Impulskomponenten $p_{Ion,x}$ und $p_{Ion,y}$ lassen sich aus dem Auftreffort und der Flugzeit T berechnen

$$p_{Ion,x} = \frac{mx}{T} \quad (5.6)$$

und analog

$$p_{Ion,y} = \frac{my}{T}, \quad (5.7)$$

mit x/y der x/y-Komponente des Auftreffortes (Nullpunkt ist der Auftreffpunkt der Ionen mit $p_{Ion,x} = 0$ und $p_{Ion,y} = 0$). Da es sich bei der Flugzeit um eine schmale Verteilung um den Wert $T_0 = \sqrt{\frac{8m}{ZeE}} z_1$ handelt, lassen sich Gleichung 5.6 und Gleichung 5.7 um diesen Wert T_0 entwickeln:

$$p_{Ion,x} = \frac{mx}{T_0} - \frac{mx\Delta T}{T_0^2} + \dots \approx \frac{mx}{T_0} \quad (5.8)$$

und analog

$$p_{Ion,y} \approx \frac{my}{T_0}. \quad (5.9)$$

Dadurch ergibt sich ein näherungsweise linearer Zusammenhang zwischen der x- und y-Komponente des Impulses und dem Auftreffpunkt.

Zusätzlich liefert die Flugzeitmessung Informationen über das $\frac{q}{m}$ Verhältnis¹. Damit lassen sich gezielt einzelne Ladungszustände von Ionen untersuchen. So ist es zum Beispiel möglich nur Ne^+ oder nur Ne^{2+} zu untersuchen.

5.2. Experimenteller Aufbau

Für die Experimente zur Untersuchung der Ionisationsdynamik von Atomen in intensiven Lichtfeldern wurden Teile aus der in Kapitel 3 beschriebenen Apparatur verwendet, so zum Beispiel die Düsenstrahlkammer und die differentielle Pumpstufe. In Abbildung 5.3 ist eine schematische Darstellung der Vakuumkammer gezeigt. Der experimentelle Aufbau besteht im Wesentlichen aus fünf Teilen: der Düsenstrahlkammer, 2 differentiellen Pumpstufen, der Wechselwirkungskammer und einem Strahlsumpf.

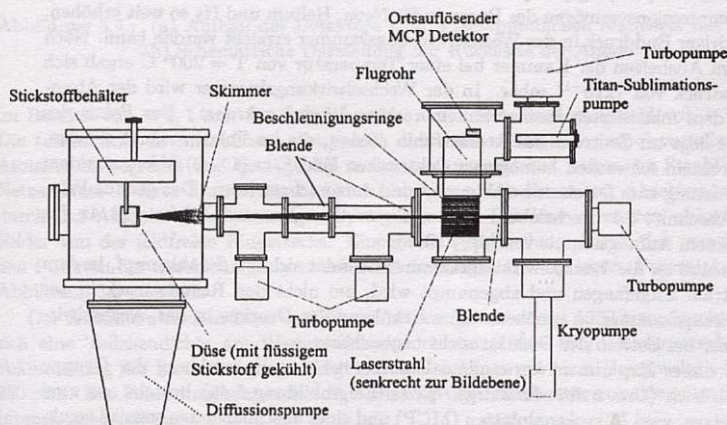


Abbildung 5.3.: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus

In der Düsenstrahlkammer wird ein kalter Atomstrahl durch eine Überschallexpansion erzeugt. Die Düse ist auf die Temperatur von flüssigem Stickstoff $T = 77 \text{ K}$ gekühlt. Die

¹Verhältnis aus dem Ladungszustand und der Masse des Ions

Kühlung ist notwendig, um zum einen die anfängliche Impulsverteilung der Atome im Atomstrahl als auch die mittlere Geschwindigkeit der Atome zu verringern und um so das Auflösungsvermögen zu verbessern. Die Verkleinerung der mittleren Geschwindigkeit erlaubt es geringere Abzugsspannungen im Spektrometer zu verwenden, und somit die auf dem Detektor effektiv genutzte Fläche zu erhöhen. Die Öffnung der Düse besitzt einen Durchmesser von $10\text{ }\mu\text{m}$. Der Vordruck kann von 0,5 bar bis 10 bar variiert werden. Bei den Messungen wurde ein Vordruck von ca. 5 bar verwendet.

Ein Skimmer befindet sich im Abstand von ca. 50 mm von der Düse und bildet den Übergang zur ersten differentiellen Pumpstufe. Am Ende dieser Stufe befindet sich ein Schlitz mit einer Abmessung von $1\text{ mm} \times 3\text{ mm}$. Im Anschluß daran folgt eine zweite differentielle Pumpstufe. Den Abschluß der zweiten differentiellen Pumpstufe bildet eine Blende mit einem Durchmesser von 8 mm.

Der kalte Atomstrahl erreicht dann die Wechselwirkungskammer (Doppelkreuz 160 CF). Die UHV Kammer wird durch zwei in Serie geschaltete Turbopumpen und einer Titan-Sublimationspumpe gepumpt. Durch die Reihenschaltung der Turbopumpen lässt sich das Kompressionsvermögen der Pumpen für Neon, Helium und H_2 so weit erhöhen, daß ein niedriger Enddruck in der Wechselwirkungskammer erreicht werden kann. Nach mehrtägigem Ausheizen der Kammer bei einer Temperatur von $T = 200^\circ\text{ C}$ ergab sich ein Restgasdruck von $7 \times 10^{-11}\text{ mbar}$. In der Wechselwirkungskammer wird der Atomstrahl von dem fokussierten Laserstrahl im rechten Winkel gekreuzt. Der Fokus des Laserstrahls liegt im Zentrum des Atomstrahls. Ionen, die im Fokus erzeugt werden, werden mit einem schwachen homogenen elektrischen Feld $E \approx (1 - 2)\text{ V/cm}$ aus dem Fokus in Richtung zum Detektor beschleunigt und dort nachgewiesen. Das genaue Prinzip ist in Abschnitt 5.1 beschrieben. Der nachgewiesene Raumwinkel beträgt 4π für Ionen mit einem Anfangsimpuls von $|\vec{p}| \leq 10\text{ a.u.}$

Im Anschluß an die Wechselwirkungskammer befindet sich ein Strahlsumpf, in dem der Atomstrahl aufgefangen und abgepumpt wird, um nicht den Restgasdruck in der Wechselwirkungskammer zu erhöhen. Eine Erhöhung des Druckes in der Wechselwirkungskammer bei Betrieb der Düse ist nicht beobachtbar.

Der für dieses Experiment verwendete Detektor ist eine Entwicklung der Gruppe von Prof. Ullrich (Universität Freiburg). Er (siehe Abbildung 5.4a) besteht aus zwei Edelstahlnetzen, zwei Mikrokanalplatten (MCP) und einer abschließenden speziell strukturierten Anode, die eine ortsauflösende Messung ermöglicht. Die Vorderseite der Anode besteht aus einer Germaniumschicht, die Rückseite ist mit drei leitenden Bereichen versehen (siehe Abbildung 5.4b, die schwarze Linie stellt die Isolation zwischen den leitenden Bereichen dar). Ionen, die zunächst auf die Vorderseite der MCPs auftreffen, lösen Elektronen aus, die in den Kanälen der MCPs vervielfacht werden und schließlich auf die Germaniumschicht der Anode treffen. Diese Elektronen induzieren eine Ladungsverschiebung auf der Rückseite der Anode. Durch Messung der drei induzierten Ladungsmengen Q_A , Q_B und Q_C läßt sich der Auftreffort der Ionen rekonstruieren. Die Ortsauflösung des Detektors beträgt $0,1\text{ mm}$ und ermöglicht damit eine Impulsauflösung

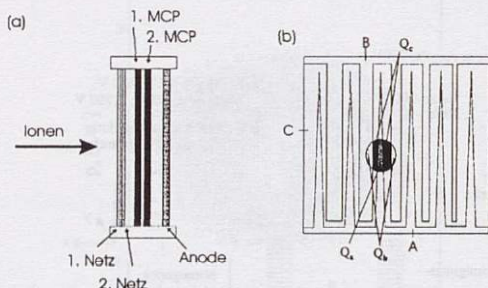


Abbildung 5.4.: (a) Aufbau des Detektors zum ortsempfindlichen Nachweis von Ionen
(b) Schematische Darstellung der Rückseite der Anode

im Bereich von $\approx 0,1$ a.u. für Ne^+ Ionen bei einem Beschleunigungsfeld von 1 V/cm. Die tatsächliche Impulsauflösung ist jedoch durch die anfängliche Impulsverteilung im Atomstrahl begrenzt und beträgt $\Delta p \approx 0,2$ a.u. parallel zur Achse des Strahls. Die Netze (Netz 1, Netz 2 und Netz 3, siehe Abbildung 5.4) dienen zur Abschirmung der durch das Anlegen der notwendigen Spannungen am Detektor erzeugten elektrischen Felder von der feldfreien Flugstrecke. Eine genaue Aufstellung der an den verschiedenen Punkten der Beschleunigungsstrecke und des Detektors angelegten Potentiale ist in Abbildung 5.5 gegeben.

Der Abstand zwischen Düse und Wechselwirkungsort beträgt 1350 mm, damit ergibt sich eine Teilchendichte am Wechselwirkungsort von $(10^8 - 10^9)$ Teilchen/cm³. Die Fokussierung der Laserstrahlung erfolgt durch eine Linse mit einer Brennweite von $f = 260$ mm. Der Fokussdurchmesser beträgt $30 \mu\text{m}$ (volle Halbwertsbreite einer Gaußschen Intensitätsverteilung).

5.3. Experimentelle Ergebnisse für zirkular polarisiertes Licht

Abbildung 5.6 zeigt die Impulsverteilung von Ne^+ Ionen in der x-z-Ebene (siehe Abbildung 5.2), die bei der Ionisation von Neon mit zirkular polarisiertem Licht gebildet wird. Der Polarisationsvektor rotiert um das Zentrum der Ausbreitungsrichtung der Lichtwelle in der x-z-Ebene. Über die y-Komponente der 3-dimensionalen Impulsverteilung wurde hier integriert. Die zur Anregung der Atome benutzten Lichtpulse verfügten über eine

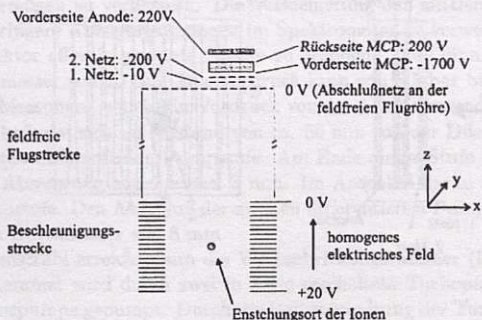


Abbildung 5.5.: Schematische Darstellung der angelegten Spannungen

Pulsenergie von 0,3 mJ und einer Pulsdauer von 28 fs. Der Fokusbereich (FWHM) betrug 30 μm .

Es handelt sich um eine ringförmige Verteilung mit einem Maximum bei ≈ 2 a.u. Die Position des Maximums der Impulsverteilung der Elektronen ist nach [107] durch:

$$|p| = \sqrt{p_x^2 + p_z^2} = \sqrt{2U_p} = 2,1 \text{ a.u.} \quad (5.10)$$

gegeben, mit U_p , dem ponderomotivem Potential (siehe Abschnitt 2.1).

Aufgrund der Impulserhaltung ist die Impulsverteilung der Ionen ein Abbild der Impulsverteilung der Photoelektronen (vernachlässigt man den Impulsübertrag durch die absorbierten Photonen). In Abbildung 5.6 ist die berechnete Position des Maximums dieser Impulsverteilung der Elektronen als schwarzer Kreis eingezeichnet. Der theoretische Wert ist in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Die gute Übereinstimmung demonstriert die Gültigkeit der in Abschnitt 5.1 angegebenen Beziehung zwischen den Impulsverteilungen der Elektronen und der Ionen.

Aufgrund der Rotationssymmetrie um die Ausbreitungsrichtung der Lichtwelle sollte sich eine entsprechende Symmetrie für die Impulse der Ne^+ Ionen ergeben. Die Abweichung von dieser Rotationssymmetrie in den experimentellen Daten ist auf nicht perfekt zirkular polarisiertes Licht (leichte Elliptizität $\xi \neq 1$ (siehe Abschnitt 4.1.3)) zurückzuführen.

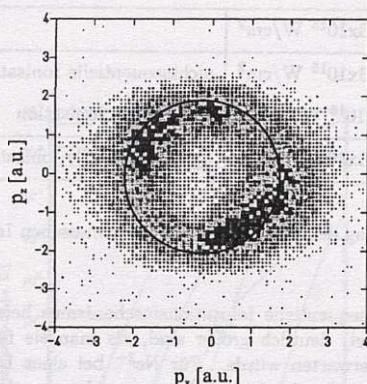


Abbildung 5.6.: Impulsverteilung der Ne^+ Ionen in der x-z-Ebene für zirkulare Polarisation des Lichtes. Die durchgezogene Kurve zeigt die theoretisch erwartete Lage des Maximums der Verteilung

5.4. Experimentelle Ergebnisse für linear polarisiertes Licht

Ähnlich wie Helium läßt sich auch bei vielen anderen Atomen ein nichtsequentielles Ioniisationsverhalten bei der Bildung von mehrfach geladenen Ionen in intensiven Lichtpulsen beobachten. In Abbildung 5.7 ist hierzu die Ausbeute von Ne^{n+} Ionen in Abhängigkeit von der Lichtintensität gezeigt. Die Kurven wurden mit Hilfe der in Abschnitt 2.3 beschriebenen empirischen Formel von M. Dammasch [4, 39] berechnet. Diese Formel reproduziert gut die gemessenen Ionenausbeuten als Funktion der Lichtintensität, so auch speziell die Messungen von Larochelle et al. [37] an Neon. Durch die Benutzung der empirischen Formel können die experimentellen Parameter für diese Messung berücksichtigt werden: Wellenlänge: 790 nm, Pulsdauer: 28 fs und Fokusbereich (FWHM): 30 μm . Zusätzlich sind in Abbildung 5.7 die mit Hilfe der ADK-Formel [5] berechneten Ionenausbeuten in Abhängigkeit von der Lichtintensität unter der Annahme eines sequentiellen Prozesses eingezeichnet. Neon zeigt für die Abhängigkeit der Ionenausbeuten von der Lichtintensität ein ähnliches Verhalten wie Helium (siehe Abschnitt 2.3). Die Punkte, an denen die im Folgenden dargestellten Messungen zur Impulsverteilung der Ionen durchgeführt wurden, sind durch Kreise gekennzeichnet und in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

Aus Abbildung 5.7 ist ersichtlich, daß bei den Messungen an Ne^{2+} und Ne^{3+} bei Intensitäten von $I = 1,3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ bzw. $I = 1,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ der Hauptbeitrag

Ne ⁺	I = 1,3x10 ¹⁵ W/cm ²	
Ne ²⁺	I = 1,3x10 ¹⁵ W/cm ²	nichtsequentielle Ionisation
	I = 4x10 ¹⁵ W/cm ²	sequentielle Ionisation
Ne ³⁺	I = 1,5x10 ¹⁵ W/cm ²	nichtsequentielle Ionisation

Tabelle 5.1.: Zusammenfassung der Intensitäten für die gemessenen Impulsverteilungen der Neⁿ⁺ Ionen.

zur Ionenausbeute der nichtsequentielle Ionisationsmechanismus liefert, da die Ionenausbeuten (empirische Formel) deutlich größer sind, als man sie für einen sequentiellen Prozeß (ADK-Kurve) erwarten würde. Für Ne²⁺ bei einer Lichtintensität von $I = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ist dagegen der dominante Beitrag zur Ionenausbeute auf sequentielle Ionisation des Atoms zurückzuführen.

Abbildung 5.8 zeigt die Impulsverteilung von Ne⁽¹⁻³⁾⁺ in der x-y-Ebene (siehe Abbildung 5.2) bei einer Lichtintensität von $I = 1,3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ für Ne⁺ und Ne²⁺ und einer Lichtintensität von $I = 1,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ für Ne³⁺. Die x-Richtung ist parallel zur Laserpolarisation gerichtet, die y-Richtung senkrecht dazu. Über die z-Komponente der Verteilung wurde integriert.

Die Impulsverteilung von Ne⁺ parallel zur Laserpolarisation zeigt eine sehr schmale Linie mit einem Maximum bei $p_{\text{Ion}} = 0$. Für Ne²⁺ und Ne³⁺ weist die Impulsverteilung parallel zur Laserpolarisation zwei separate Maxima auf. Diese Maxima liegen bei $\pm 4 \text{ a.u.} / \pm 7,5 \text{ a.u.}$ für Ne²⁺/Ne³⁺.

Die Impulsverteilungen für Ne⁽¹⁻³⁾⁺ senkrecht zur Laserpolarisation weisen keine Struktur auf und besitzen alle ein Maximum bei Null. Nur die Breite der Verteilung vergrößert sich für höher geladene Ionen.

Im Folgenden werden diese Verteilungen der Impulse etwas genauer untersucht.

5.4.1. Impulsverteilung von Ne⁺

In Abbildung 5.9 ist die Projektion der Verteilung der Impulse für Ne⁺ auf die Achsen senkrecht und parallel zur Laserpolarisation gezeigt. Die Projektion $P(p_1)$ der gemessenen Impulsverteilung $f(\vec{p})$ auf eine Achse p_1 erfolgt durch die Integration über die zwei dazu orthogonalen kartesischen Koordinaten,

$$P(p_1) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} f(\vec{p}) dp_2 dp_3. \quad (5.11)$$

Der einfache Ionisationsprozeß läßt sich als elektrische Feldionisation beschreiben. Der Impuls des Ions und Elektrons nach der Tunnelionisation ist Null [107]. Der an-

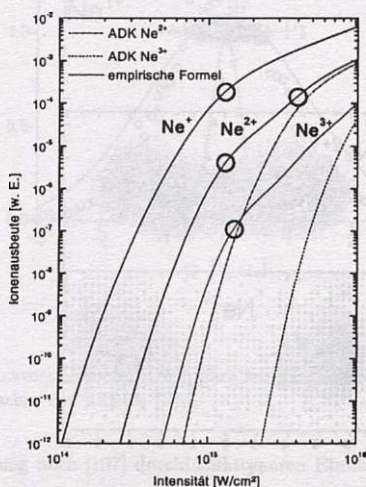


Abbildung 5.7.: Die mit Hilfe der empirischen Formel (siehe Abschnitt 2.3) berechneten Ionenausbeuten von Ne^+ , Ne^{2+} und Ne^{3+} in Abhängigkeit von der Lichtintensität [4]. Zusätzlich sind die nach der ADK-Theorie (sequentieller Prozeß) berechneten Ionenausbeuten aufgetragen. Die Kreise markieren die Lichtintensitäten und den Ladungszustand der Ionen für die im Folgenden dargestellten Impulsverteilungen.

schließlich durch das elektrische Feld der Lichtwelle auf das geladene Teilchen für $t \rightarrow \infty$ übertragene Impuls hängt von dem Startzeitpunkt im Feld ab.

Für ein Feld

$$E = E_0 \sin(\omega t + \phi) \quad (5.12)$$

ergibt sich für den Impulstransfer parallel zur Polarisationsrichtung der Lichtwelle

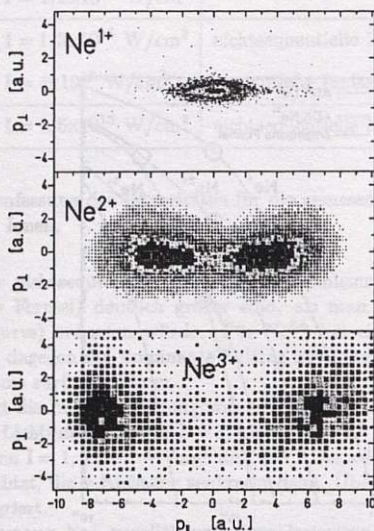


Abbildung 5.8.: Impulsverteilung von $\text{Ne}^{(1-3)+}$ in der Ebene parallel und senkrecht zur Polarisationsachse des Lichtes

(unter der Annahme: $2\pi/\omega \ll \text{Pulsdauer}$)²

$$p_{\text{Feld}} \simeq 2 \frac{q}{e} \sqrt{m U_p} \cos(\phi), \quad (5.13)$$

mit $U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2}$ dem ponderomotiven Potential, q der Ladung des Teilchens, e der Elementarladung, m der Masse des Teilchens und ϕ der Phase des Feldes zum Startzeitpunkt ($t=0$). Da Tunnelionisation am wahrscheinlichsten in der Nähe der Maxima der oszillierenden elektrischen Feldstärke ($\phi \approx 0$ in Gleichung 5.12) erfolgt, ergibt sich ein Impulsübertrag von $p_{\text{Feld}} \approx 0$. Man erwartet daher qualitativ eine Impulsverteilung mit einem Maximum bei $p_{\parallel, \text{Ion}} = 0$, wie sie experimentell auch beobachtet wird (siehe Abbildung 5.9).

Quantitativ ist die Impulsverteilung der Elektronen parallel (\parallel) und senkrecht (\perp)

²in diesem Experiment beträgt $2\pi/\omega \approx 2,6$ fs und die Pulsdauer 28 fs

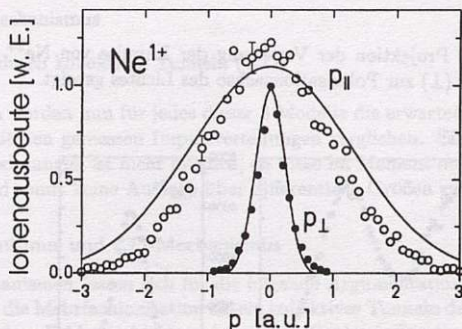


Abbildung 5.9.: Impulsverteilung von Ne^+ parallel (\parallel) und senkrecht (\perp) zur Polarisationsachse des Lichtes

zur Polarisationsrichtung nach [107] durch (in atomaren Einheiten):

$$w(p_{\parallel,e}, p_{\perp,e}) \propto \exp\left(-\frac{\omega^2(2I_p)^{3/2}}{3F^3} p_{\parallel,e}^2\right) \exp\left(-\frac{(2I_p)^{1/2}}{F} p_{\perp,e}^2\right) \quad (5.14)$$

gegeben, wobei F die elektrische Feldstärke des Laserpulses, I_p das Ionisationspotential und ω die Laserfrequenz ist.

Für die Einfachionisation beschreibt Gleichung 5.14 ebenfalls die Verteilung der Impulse der Ionen ($\vec{p}_e = -\vec{p}_{\text{Ion}}$). Die durchgezogene Kurve in Abbildung 5.9 zeigt die berechnete Verteilung der Impulse der Elektronen (oder Ionen). Die Übereinstimmung mit den gemessenen Daten ist hervorragend. Der einzige freie Parameter in Gleichung 5.14 ist die elektrische Feldstärke und damit die Intensität des Lichtes. Die gute Übereinstimmung zeigt weiter, daß die aus der Pulsenergie, dem Fokusbereich und der Pulsdauer bestimmte Intensität zu einer mit dem Experiment übereinstimmenden Impulsverteilung für Ne^+ führt. Damit sollte der absolute Fehler der Intensität bei maximal $\approx 20\%$ liegen.

Abschließend lässt sich bemerken, daß der Prozess der Einfachionisation sehr gut verstanden ist und sich im Rahmen dieser Messung durch das theoretische Modell der quasistatischen Feldionisation hinreichend gut beschreiben läßt.

5.4.2. Verteilung der Impulse von Ne^{2+} und Ne^{3+} im nichtsequentiellen Bereich

In Abbildung 5.10 ist die Projektion der Verteilung der Impulse von Ne^{2+} und Ne^{3+} parallel (\parallel) und senkrecht (\perp) zur Polarisationsachse des Lichtes gezeigt.

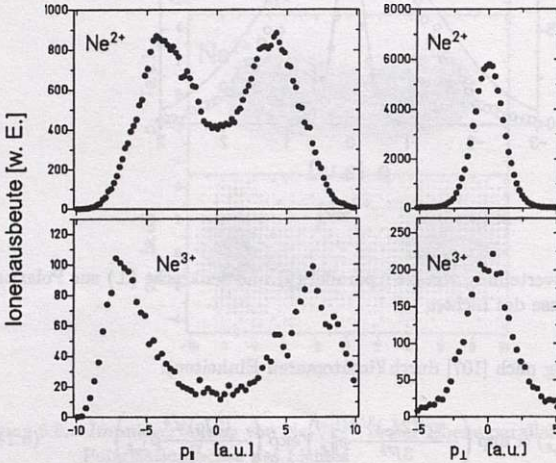


Abbildung 5.10.: Verteilungen der Impulse von Ne^{2+} und Ne^{3+} parallel und senkrecht zur Polarisationsachse des Lichtes, bei einer Lichtintensität von $I = 1,3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ für Ne^{2+} und einer Lichtintensität von $I = 1,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ für Ne^{3+} .

Die Impulsverteilungen parallel zur Laserpolarisation zeigen für Ne^{2+} und Ne^{3+} im Gegensatz zur Impulsverteilung von Ne^+ zwei Maxima. Die Breite der Impulsverteilung senkrecht zur Laserpolarisation vergrößert sich mit dem Ladungszustand des Ions von 2 a.u. für Ne^{2+} auf 3,6 a.u. für Ne^{3+} .

In Kapitel 2 wurden die Grundlagen der Ionisationsdynamik von Atomen in starken Laserfeldern angesprochen. Im Bereich der nichtsequentiellen Ionisation ist der physikalische Mechanismus nicht geklärt. Die verschiedenen Modelle wurden bereits in Kapitel 2 (Abschnitt 2.3) vorgestellt:

- „Rescattering“-Mechanismus
- „Shake“-Mechanismus
- Ionisation durch kollektives Tunneln (CTI)

Im Folgenden werden nun für jedes dieser 3 Modelle die erwarteten Impulsverteilungen qualitativ mit den gemessenen Impulsverteilungen verglichen. Ein Vergleich mit den quantitativen Rechnungen ist nicht möglich, da diese im Moment nur integrale Informationen liefern und somit keine Aussage über differentielle Größen geben.

„Shake“-Mechanismus und CTI-Mechanismus

Die beiden Mechanismen lassen sich für die folgende Argumentation zusammenfassen.

Bei CTI wird die Mehrfachionisation als ein kollektives Tunneln der Elektronen durch die vom elektrischen Feld des Lichtes abgesenkte Coulomb-Barriere beschrieben. Die Wahrscheinlichkeit hierfür ist, analog zur Einfachionisation, am höchsten in den Maxima der oszillierenden elektrischen Feldstärke der Lichtwelle.

Beim Shake-Prozess wird zunächst das erste Elektron durch elektrische Feldionisation freigesetzt und durch das Laserfeld sehr schnell vom Ion entfernt. Das zweite Elektron kann sich nicht adiabatisch an das neue Potential anpassen und wird mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit gleichzeitig freigesetzt (in das Ionisationskontinuum geschüttelt). Der erste Schritt ist die elektrische Feldionisation des ersten Elektrons. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozeß ist am höchsten in den Maxima der oszillierenden elektrischen Feldstärke der Lichtwelle. Die Freisetzung des zweiten Elektrons erfolgt dann auf der Zeitskala einer Laserperiode instantan mit dem ersten Elektron.

Damit zeigt sich, daß in beiden Modellen beide Photoelektronen in den Maxima der oszillierenden elektrischen Feldstärke erzeugt werden. Der anschließend auf die Elektronen und das mehrfach geladene Ion durch das Feld übertragene Impuls ist minimal. Die daraus resultierende Impulsverteilung sollte wie bei der Einfachionisation ein Maximum bei Null haben. Jedoch zeigen die Meßdaten zwei Maxima bei $\pm(3 - 4)$ a.u. Dies steht im klaren Widerspruch zu der qualitativen Form, der bei diesen Mechanismen erwarteten Impulsverteilung. Damit liefern diese Mechanismen *keinen* dominanten Beitrag zur nichtsequentiellen Ionisation.

„Rescattering“-Mechanismus

Der verbleibende Mechanismus ist das „Rescattering“. Hier wird das erste Elektron durch Feldionisation freigesetzt und im elektrischen Feld der Lichtwelle beschleunigt. Es kommt dann bei bestimmten Anfangsbedingungen wieder zum Ion zurück und kann durch Stoßionisation weitere Elektronen freisetzen. Der Mechanismus soll nun etwas genauer untersucht werden.

Das elektrische Feld der elektromagnetischen Welle lässt sich schreiben als

$$E = E_0 \sin(\omega t + \phi). \quad (5.15)$$

Die Bewegung des Photoelektrons entlang der Polarisationsrichtung der Lichtwelle in diesem elektrischen Feld mit den Anfangsbedingungen $x(t=0) = 0$ und $\dot{x}(t=0) = 0$ ist damit durch:

$$x(t) = -\frac{qE_0}{m\omega^2} \sin(\omega t + \phi) + \frac{qE_0}{m\omega} \cos(\phi)t + \frac{qE_0}{m\omega^2} \sin(\phi) \quad (5.16)$$

gegeben. Für bestimmte Phasen ϕ kommt das Elektron, das zum Zeitpunkt $t=0$ am Ort $x(t=0) = 0$ gestartet ist, wieder zum Ion zurück, d.h. $x(t > 0) = 0$. In Abbildung 5.11a sind schematisch die Startphasen gezeigt, für die eine Rückkehr möglich ist. Die Bedingung für die Rückkehr lautet:

$$x(t = t_R) = 0. \quad (5.17)$$

Mit Gleichung 5.16 ergibt sich:

$$\frac{qE_0}{m\omega^2} \sin(\omega t_R + \phi) = \frac{qE_0}{m\omega} \cos(\phi)t_R + \frac{qE_0}{m\omega^2} \sin(\phi). \quad (5.18)$$

Dies lässt sich schreiben als:

$$E_0 \sin(\omega t_R + \phi) = E_0 * \omega \cos(\phi)t_R + E_0 \sin(\phi). \quad (5.19)$$

Gleichung 5.19 lässt sich graphisch leicht veranschaulichen (siehe Abbildung 5.11b). Die Phase der Rückkehr ωt_R des Elektrons ist durch den Schnittpunkt der Kurve des elektrischen Feldes und der Tangente an diese Kurve am Startpunkt gegeben. Durch Lösung der Gleichung 5.19 lässt sich die Phase bestimmen, für die das Elektron zum Ion zurückkehren kann. In Abbildung 5.11c ist die Phase ωt_R für die Rückkehr in Abhängigkeit von der Startphase ϕ gezeigt.

Die kinetische Energie des Elektrons zum Zeitpunkt der Rückkehr in Abhängigkeit von der Startphase des Elektrons ist in Abbildung 5.11d gezeigt.

Beim „Rescattering“-Mechanismus kommt das erste Elektron zum Ion zurück und besitzt nach (5.11d) den Impuls:

$$\vec{p}_0 = \sqrt{2E_{kin}} \hat{e}_p. \quad (5.20)$$

Die Richtung des Impulses ist parallel bzw. antiparallel zum Polarisationsvektor \hat{e}_p des Lichtes. Erfolgt nun durch Stoßionisation die Freisetzung von $n-1$ weiteren Elektronen, dann lässt sich mit Hilfe der Impulserhaltung:

$$\vec{p}_0 = \Delta \vec{p}_{Ion} + \sum_{i=1}^n \vec{p}_i \quad (5.21)$$

5.4. Experimentelle Ergebnisse für linear polarisiertes Licht

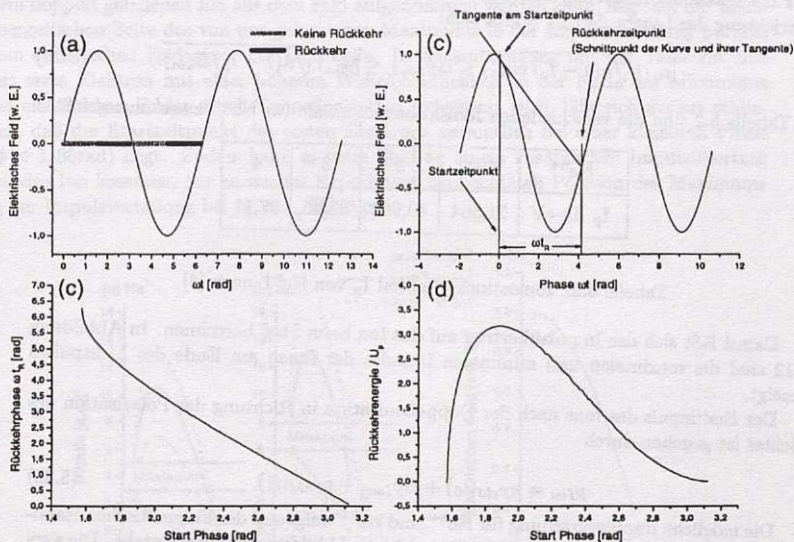


Abbildung 5.11.: (a) Abhängigkeit der Rückkehr des Elektrons von der Startphase. (b) Graphische Lösung der Rückkehrbedingung. (c) Zeitpunkt der Phase für die Rückkehr ωt_R . (d) Kinetische Energie des Elektrons bei der Rückkehr

und der Energieerhaltung (mit I_p , dem Ionisationspotential für n Elektronen):

$$\frac{p_1^2}{2} - I_p = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^n p_i^2 \quad (5.22)$$

eine obere und eine untere Grenze für den Impulsübertrag auf das Ion berechnen. Für die Änderung der Impulskomponente des Ions parallel zur Polarisationsrichtung des Lasers $\Delta p_{Ion||}$ ergibt sich:

$$|p_{0||}| \left(1 - \sqrt{n(1 - I_p/E_{kin})} \right) \leq \Delta p_{Ion||} \leq |\Delta p_{0||}| \left(1 + \sqrt{n(1 - I_p/E_{kin})} \right). \quad (5.23)$$

5. Ionisationsdynamik von Atomen in intensiven Lichtfeldern

Für die maximale Änderung der Impulskomponente des Ions senkrecht zur Polarisationsrichtung des Lasers $\Delta p_{Ion\perp}$ ergibt sich:

$$-|p_{0\perp}| \sqrt{n(1 - I_p/E_{kin})} \leq \Delta p_{Ion\perp} \leq |p_{0\perp}| \sqrt{n(1 - I_p/E_{kin})}. \quad (5.24)$$

In Tabelle 5.2 sind die verschiedenen Ionisationspotentiale für Ne^{n+} zusammengefaßt.

Ne^{n+}	$n=1$	2	3	4
I_p in eV	21,564	40,962	63,45	97,11

Tabelle 5.2.: Ionisationspotential I_p von Ne^{n+} nach [6]

Damit läßt sich der Impulsübertrag auf das Ion beim Stoß berechnen. In Abbildung 5.12 sind die maximalen und minimalen Impulse der Ionen am Ende des Lichtpulses gezeigt.

Der Endimpuls des Ions nach der Doppelionisation in Richtung der Polarisation des Lichtes ist gegeben durch

$$p_{Ion} = p_{Feld}(t_0) + \Delta p_{Ion\parallel} + p_{Feld}(t_1). \quad (5.25)$$

Die mögliche Impulsverteilung für Ne^{2+} und Ne^{3+} aufgrund der kinematischen Randbedingungen (Impuls- und Energieerhaltung) ist in Abbildung 5.12 dargestellt. Die zwei horizontalen Linien kennzeichnen die obere und untere Grenze des Maximums der gemessenen Impulsverteilungen für Ne^{2+} und Ne^{3+} (siehe Abbildung 5.8). Damit sind die gemessenen Impulse im aufgrund der Impuls- und Energieerhaltung erlaubten Bereich für die Impulse. Damit widerspricht das „Rescattering“-Modell als einziges nicht den gemessenen Daten.

Die möglichen Impulse liegen für Ne^{2+} bei einer Intensität von $I = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ in einem Bereich von -2 a.u. bis 10 a.u. Für Ne^{3+} hingegen liegen die erlaubten Impulse zwischen 2 a.u. bis 12 a.u. Erhöht sich die Lichtintensität, so erweitert sich der Bereich der erlaubten Impulse und der möglichen Startphasen (Anzahl der Trajektorien). Fällt jedoch die Lichtintensität unter eine bestimmte Schwellenintensität, so reicht die Energie des zurückkommenden Elektrons nicht mehr aus, um ein weiteres Elektron oder weitere Elektronen durch einen inelastischen Stoß ins Kontinuum zu befördern. Wie oben gezeigt wurde, hängt die kinetische Energie des zurückkommenden Elektrons von den Anfangsbedingungen ab. Die größte kinetische Energie erhält man für ein Elektron das bei der Phase $\phi \approx 1,88 \text{ rad}$ startet. Der Rückkehrzeitpunkt des Elektrons liegt dann im Nulldurchgang des Feldes. Erfolgt eine Ionisation des Systems, so beträgt der durch das Feld auf das Ne^{2+} Ion übertragene Impuls $4\sqrt{U_p}$ (mit U_p dem ponderomotiven Potential für ein Elektron). Bei einer Intensität von $I = 1,3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ erhält

man damit einen Impulsübertrag von 6,7 a.u. Dieser Impulsübertrag, der maximal von dem doppelt geladenen Ion aus dem Feld aufgenommen werden kann, liegt auf der hoch-energetischen Seite des von uns gefundenen Maximums in der Impulsverteilung parallel zum elektrischen Feldvektor der Lichtwelle. In Zusammenhang mit der Tatsache, daß das erste Elektron mit einer höheren Wahrscheinlichkeit in der Nähe des Maximums des elektrischen Feldes durch Tunnelionisation freigesetzt wird, läßt sich daraus schließen, daß der Startzeitpunkt des ersten Elektrons vermutlich bei einer kleineren Phase ($\phi < 1,88\text{rad}$) liegt. Zudem kann es beim Stoß zu einem zusätzlichen Impulsübertrag auf das Ion kommen, der zu der im Experiment beobachteten Position des Maximums in der Impulsverteilung bei $p_{\parallel} < 4\sqrt{U_p}$ führt.

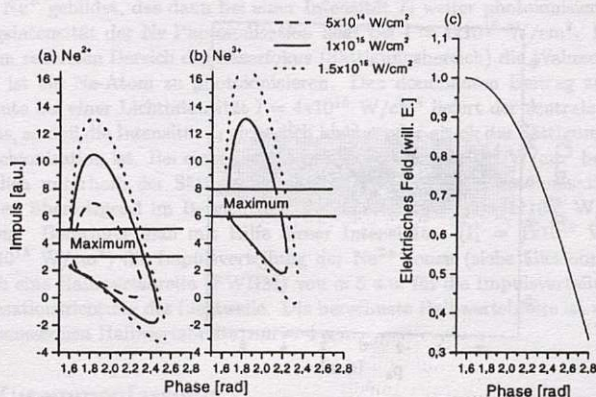


Abbildung 5.12.: Mögliche Impulse unter Berücksichtigung der kinematischen Randbedingungen in Abhängigkeit von der Startphase des ersten Elektrons für Ne^{2+} (a) und Ne^{3+} (b) (näheres siehe Text). Zusätzlich ist in (c) die elektrische Feldstärke des Lichtes zum Startzeitpunkt (Startphase) gezeigt.

5.4.3. Verteilung der Impulse von Ne^{2+} im sequentiellen Bereich

Die Impulsverteilung der Ne^{2+} Ionen im nichtsequentiellen Bereich der Ionisation ($I = 1,3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$) zeigt zwei deutlich voneinander separierte Maxima in Richtung der Laserpolarisation. Bei einer Erhöhung der Intensität sollten sich im Rahmen der „Rescattering“ Bildes die Maxima zu höheren Impulsen hin verschieben und die Linien sich

5. Ionisationsdynamik von Atomen in intensiven Lichtfeldern

verbreitern. Erhöht man die Intensität weiter, so gelangt man in den Bereich der sequentiellen Ionisation. Die Impulsverteilung in diesem Bereich sollte ähnlich zur Einfachionisation eine Impulsverteilung mit einem Maximum bei Null ergeben. Beide Elektronen werden unabhängig voneinander durch elektrische Feldionisation in den Maxima des oszillierenden elektrischen Feldes freigesetzt. Der durch das Feld auf die Ionen übertragene Impuls ist daher ungefähr Null. Man erwartet daher eine Impulsverteilung mit einem Maximum bei Null zu messen. In Abbildung 5.13 ist die Impulsverteilung der Ne^{2+} bei einer Lichtintensität von $I = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ (Bereich der sequentiellen Ionisation) gezeigt.

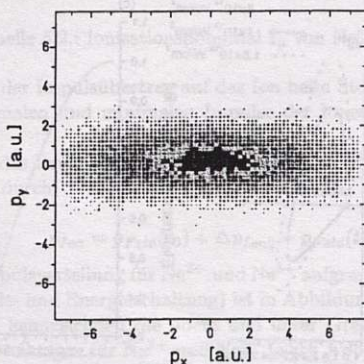


Abbildung 5.13.: Verteilungen der Impulse von Ne^{2+} parallel (x-Richtung) und senkrecht (y-Richtung) zur Polarisationsachse des Lichtes bei einer Lichtintensität von $I = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

Man erkennt deutlich den Unterschied zwischen der Impulsverteilung der Ne^{2+} Ionen im nichtsequentiellen und im sequentiellen Bereich der Ionisation. Die Impulsverteilung entspricht qualitativ der erwarteten Impulsverteilung.

Weiter zeigt sich, daß die Breite der Impulsverteilung der Ionen ($\text{FWHM} < 4 \text{ a.u.}$) verglichen mit dem Abstand der beiden Maxima bei nichtsequentieller Ionisation ($\approx 8 \text{ a.u.}$) bei einer Intensität $I = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ schmaler ist und damit eindeutig nicht mehr durch den „Rescattering“-Mechanismus dominiert wird.

Quantitativ ist die Impulsverteilung des ersten ($i=1$) bzw. zweiten ($i=2$) Photoelektrons bei sequentieller Ionisation gegeben durch [107]:

$$w_i(p_{\parallel}) \propto \exp \left(-\frac{\omega^2 (2I_{p,i})^{3/2}}{3F_i^3} p_{\parallel}^2 \right), \quad (5.26)$$

mit F_i der elektrischen Feldstärke zum Zeitpunkt der Ionisation, $I_{p,i}$ dem Ionisationspotential für das i -te Elektron und ω der Laserfrequenz. Die Impulsverteilung der Ionen ist durch die Faltung der beiden Verteilungen gegeben:

$$w(p_{\parallel}) = \int_{-\infty}^{\infty} w_1(p'_{\parallel}) w_2(p_{\parallel} - p'_{\parallel}) dp'_{\parallel}. \quad (5.27)$$

Bei der sequentiellen Ionisation von Ne^{2+} wird bei einer niedrigen Intensität I_1 zunächst Ne^+ gebildet, das dann bei einer Intensität I_2 weiter photoionisiert wird. Die Sättigungsintensität der Ne Photoionisation liegt bei $I \approx 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Dies bedeutet, daß im zentralen Bereich des Laserfokus (Sättigungsbereich) die Wahrscheinlichkeit nahezu 1 ist ein Ne-Atom zu photoionisieren. Den dominanten Beitrag zur Ne^{2+} Ionenausbeute bei einer Lichtintensität $I = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ liefert der zentrale Bereich im Laserfokus, so daß die Intensität I_1 sicherlich kleiner oder gleich der Sättigungsintensität der Einfachionisation ist. Bei einer Lichtintensität von $I = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ befindet man sich deutlich unterhalb der Sättigungsintensität für die Ne^+ Photoionisation, so daß Ne^{2+} Ionen überwiegend im Bereich der Spitzenintensität $I_2 = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ gebildet werden. Berechnet man mit Hilfe dieser Intensitäten ($I_1 = 1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und ($I_2 = 4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$) die Impulsverteilung der Ne^{2+} Ionen (siehe Gleichung 5.27), so ergibt sich eine Halbwertsbreite (FWHM) von $\approx 5 \text{ a.u.}$ für die Impulsverteilung entlang der Polarisationsrichtung des Lichtwelle. Die berechnete Halbwertsbreite ist vergleichbar mit der gemessenen Halbwertsbreite von $\approx 4 \text{ a.u.}$.

5.5. Zusammenfassung

Es hat sich gezeigt, daß die Methode der COLTRIMS erfolgreich zur Untersuchung der nichtsequentiellen Ionisation eingesetzt werden kann.

Damit war es möglich zu zeigen, daß einige der in Abschnitt 2.3 vorgestellten Ionisationsmechanismen keinen dominanten Beitrag zur nichtsequentiellen Ionisation liefern können. Bei diesen Mechanismen handelt es sich um solche, die die Ionisation der Elektronen bei maximaler elektrischen Feldstärke des Lichtes favorisieren. Beispiele hierfür sind kollektives Tunneln von Elektronen (CTI) und der „Shake“-Mechanismus. Sequentielle Ionisation kann eindeutig ausgeschlossen werden.

Hingegen zeigt sich, daß die semi-klassische Beschreibung des „Rescattering“ Mechanismus unter Berücksichtigung von Impuls- und Energieerhaltung nicht im Widerspruch zu den gemessenen Daten steht. Wie in Abschnitt 2.3 erläutert wurde, scheinen die von Ivanov et. al. [44] in einem komplexeren semi-klassischen „Rescattering“-Modell berechneten Ionisationsraten die integralen experimentellen Daten für Helium erklären zu



5. Ionisationsdynamik von Atomen in intensiven Lichtfeldern

können. Damit stellt der „Rescattering“ Mechanismus einen viel versprechenden Ansatz dar.

Durch die Messung der Impulsverteilung von Ne^{2+} bei zwei verschiedenen Lichtintensitäten konnten eindeutig signifikante Unterschiede in der Impulsverteilung zwischen dem sequentiellen und dem nichtsequentiellen Bereich der Ionisation gezeigt werden.

Durch eine Erweiterung des Experimentes werden sich noch wesentliche ungeklärte Fragen beantworten lassen, wie zum Beispiel die Impulsaufteilung zwischen den beiden Photoelektronen. Durch die gleichzeitige Messung des Impulses eines der bei der Doppelionisation von Neon entstehenden Elektronen und des Ions kann diese Aufteilung berechnet werden. Eine entsprechende Erweiterung des Experiments ist bereits in Vorbereitung und wird innerhalb der nächsten Jahre zur vollständigen Klärung des nichtsequentiellen Ionisationsprozesses beitragen können.

6. Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurden experimentellen Untersuchungen zur Fragmentationsdynamik von Atomen und Molekülen in intensiven Lichtfeldern durchgeführt. Unser heutiges Wissen auf diesem Gebiet beschränkt sich auf das mittlerweile nahezu vollständige Verständnis der Einfachionisation von Atomen. Liegt dagegen eine Fragmentation in mehrere Teilchen vor, erreicht man schnell die Grenze des derzeitigen Kenntnisstandes. Zudem kann bei den in den Experimenten verwendeten Lichtintensitäten die Störung des Systems (Atom oder Molekül) durch das äußere elektrische Feld der Lichtwelle nicht mehr störungstheoretisch behandelt werden und führt so zu einer Vielzahl neuer Phänomene. Das Ziel dieser Arbeit war es, den Zerfall in wenige Teilchen im Endzustand in intensiven Lichtfeldern detaillierter zu untersuchen. In den hier beschriebenen Experimenten bricht ein anfänglich neutrales System (Atom oder Molekül) in mehrere geladene Teilchen auf.

Zur Zerfallsdynamik von H_2/D_2 in intensiven Lichtfeldern konnten durch den Aufbau einer speziell angepassten Apparatur hochauflösende Messungen zur Verteilung der kinetischen Energie geladener Fragmente durchgeführt werden. In vorangegangenen Experimenten an H_2/D_2 war die Auflösung immer durch die thermische Geschwindigkeitsverteilung der H_2/D_2 Moleküle beschränkt. Durch die Verwendung eines durch eine Überschallexpansion adiabatisch gekühlten Molekularstrahls war es möglich, diese Limitierung zu überwinden. Es zeigte sich dabei, daß die Verteilung der Energien der H^+ Ionen aus der Dissoziation $H_2^+ + 2\hbar\omega \rightarrow H^+ + H(1s)$ (Floquet 2-Photonen-Kanal) im Vergleich zu vorangegangenen Messungen (mit einer schlechteren Auflösung) wesentlich schmaler ist. Aufgrund dieser hohen Auflösung ließ sich der Einfluß der Isotope H_2/D_2 und der Pulsdauer der zur Anregung der Moleküle benutzten Lichtpulse auf die Spektren erstmals messen. Diese Effekte konnten von M. Lein et. al. [89] theoretisch bestätigt werden.

Weiter war es durch den Einsatz von sehr intensiven Lichtpulsen ($I > 3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$) möglich, eine direkte Photoionisation des Vibrationsgrundzustand im elektrischen Zustand $1s\sigma_g$ von H_2^+/D_2^+ zu beobachten. Durch die anschließende Coulomb-Explosion erhält man Dissoziationsfragmente mit einer sehr hohen kinetischen Energie ($E_{\text{kin}} = (5 - 9) \text{ eV}$). Der Anteil der Dissoziationsfragmente in diesem Kanal ist sehr klein (wenige Prozent der Gesamtausbeute der geladenen Dissoziationsfragmente) und wurde bisher nicht beobachtet. Damit zeigen diese Messungen zum ersten Mal eine Coulomb-Explosion von H_2^+/D_2^+ außerhalb des Kernabstandsbereiches, in dem die ladungsreso-

nante Erhöhung der Ionisationsrate (CREI) auftritt.

Für ein grundlegendes Verständnis der Dissoziationsdynamik von H_2/D_2 wurde die Ausrichtung der Moleküle in intensiven ultrakurzen Lichtpulsen (Pulsdauer < 30 fs) anhand der Winkelverteilung der geladenen Fragmente und der Verwendung von elliptisch polarisiertem Licht zur Anregung untersucht. Es zeigte sich, daß die Ausrichtung der Moleküle auf einer Zeitskala unterhalb von 30 fs stattfindet.

Aus der Kombination der hochauflösenden Messung der Verteilung der kinetischen Energie und der Verwendung von ultrakurzen Lichtpulsen (Pulsdauer (FWHM) < 30 fs) war es möglich, die zu Beginn dieser Arbeit entstandenen Pump-Probe Messungen (Pulsdauer 80 fs) durch eine höhere Zeitauflösung zu verbessern, und so eine Methode zur Abbildung der dissoziierenden Kernwellenfunktion zu entwickeln. Durch den ersten Laserpuls wird zunächst D_2^+ am Gleichgewichtsabstand von D_2 erzeugt, das anschließend im Floquet 2-Photonen Kanal dissoziiert. Der zweite zeitlich zum ersten Laserpuls verzögerte Laserpuls ionisiert das dissoziierende System und initiiert damit eine Coulomb-Explosion des Systems. Durch die Messung der Verteilung der kinetischen Energie der geladenen Fragmente läßt sich der Abstand der Kerne zum Zeitpunkt der zweiten Photoionisation bestimmen und somit die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Kernwellenfunktion im Ortsraum berechnen. Es zeigte sich dabei, daß die vorhandene Auflösung ausreicht, um ein grobes Bild von der Kernwellenfunktion zu erhalten. Durch die Verwendung von Lasersystemen mit Pulsdauern von wenigen Femtosekunden läßt sich das zeitliche Auflösungsvermögen weiter erhöhen. In absehbarer Zeit werden diese Lasersysteme mit den entsprechenden Pulsenergien über die für diese Experimente notwendige Stabilität verfügen und so eine Reihe von weiterführenden Experimenten in diesem Gebiet ermöglichen.

Die Fragmentationsdynamik von Atomen in intensiven Lichtfeldern stellt den zweiten Teil dieser Arbeit dar. Mit den Erfahrungen aus dem ersten Teil wurde in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Ullrich (Universität Freiburg) ein Apparatur zur hochauflösenden Messung des Impulsvektors der bei der Wechselwirkung mit den Lichtpulsen entstehenden Ionen aufgebaut. Die Impulsverteilungen der einfach und mehrfach geladenen Ne^{n+} Ionen ($n=1,2$ und 3) wurden bei verschiedenen Lichtintensitäten gemessen. Die Impulsverteilungen der mehrfach geladenen Neon Ionen erlauben es, zwischen sequentieller und nichtsequentieller Ionisation zu unterscheiden. Des weiteren konnten mit ihrer Hilfe verschiedene Mechanismen, wie der „Shake“-Prozess oder das kollektive Tunneln von mehreren Elektronen durch die vom elektrischen Feld der Lichtwelle abgesenkte Coulomb-Barriere (CTI) als dominante Beiträge zur nichtsequentiellen Ionisation ausgeschlossen werden. Hingegen hat sich gezeigt, daß die semi-klassische Beschreibung des „Rescattering“ Mechanismus nicht im Widerspruch zu den gemessenen Daten steht und somit einen vielversprechenden Ansatz zur Interpretation der Meßergebnisse darstellt.

Durch eine Erweiterung des Experimentes läßt sich die Impulsverteilung der beiden bei der Photoionisation entstehenden Elektronen bestimmen. Dies ist durch die

Messung des Impulses eines der beiden Elektronen und des Ions möglich. Diese Experimente werden in absehbarer Zukunft zur vollständigen Klärung des nichtsequentiellen Ionisationsmechanismus beitragen. Durch die Anwendung der COLTRIM Spektroskopie auf dem Gebiet der Fragmentationsdynamik von Molekülen in intensiven Lichtfeldern werden sich in Zukunft verschiedene offene Fragen zur Wechselwirkung von intensiven Lichtfeldern mit Molekülen, so zum Beispiel die Bedeutung der Korrelationen in der Fragmentation in Elektronen und geladene Dissoziationsprodukte, klären lassen.

A. Quantenmechanische Behandlung von H_2^+ in intensiven Lichtfeldern

Die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung lautet wie folgt:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi = H\psi. \quad (\text{A.1})$$

Die Terme des Hamiltonoperators

$$H = H_0 + H'(t) \quad (\text{A.2})$$

für das H_2^+ Ion lassen sich unter Vernachlässigung der Rotation des Moleküls schreiben als:

$$H_0 = -\frac{1}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \underbrace{\frac{1}{2} p_{\vec{r}}^2 + V_{\text{coul}}}_{H_{\text{el}}} \quad (\text{A.3})$$

mit

$$V_{\text{Coul}} = -\frac{1}{|\vec{r} - R/2\hat{e}_z|} - \frac{1}{|\vec{r} + R/2\hat{e}_z|} + \frac{1}{|R|}, \quad (\text{A.4})$$

wobei $-i\hbar \frac{\partial}{\partial R}$ der Impulsoperator für die Kernbewegung entlang der Kernverbindungsachse (identisch mit der z-Achse des Koordinatensystems), $p_{\vec{r}}$ der Impulsoperator für die Elektronenbewegung, μ die reduzierte Kernmasse, R der Kernabstand, \vec{r} die Ortskoordinaten des Elektrons im Schwerpunktsystem der Kerne und \hat{e}_z der Einheitsvektor in Richtung der Kernverbindungsachse ist. Die Störung durch die Lichtwelle läßt sich in der Längeneichung der Dipolnäherung schreiben als:

$$H' = E(t)(e\vec{r})\hat{e}_R, \quad (\text{A.5})$$

mit $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ dem elektrischen Wechselfeld der Lichtwelle (E_0 : Amplitude des Wechselfeldes, ω : Frequenz des Lichtes). Die Polarisierung der Lichtwelle ist parallel zur Kernverbindungsachse gewählt. Die korrekte Kern-Elektronen-Wellenfunktion des H_2^+ Ions sollte einen vollständigen Satz von elektronischen Eigenfunktionen enthalten. Jedoch zeigen experimentelle Beobachtungen, daß die Dynamik von H_2^+ in starken

Lichtfeldern im Wesentlichen durch die beiden energetisch niedrigsten ungestörten elektronischen Zustände ($1s\sigma_g$, $2p\sigma_u$) bestimmt ist. Daher beinhaltet ein Ansatz für die Gesamtwellenfunktion zur Beschreibung der Elektronen- und Kernbewegung nur die beiden dazugehörigen Wellenfunktionen:

$$\psi = \varphi_g \phi_g + \varphi_u \phi_u, \quad (\text{A.6})$$

mit $\varphi_g(R, \vec{r})$ und $\varphi_u(R, \vec{r})$ der elektronischen Wellenfunktion des $1s\sigma_g$ bzw. $2p\sigma_u$ Zustandes und $\phi_{g,u}(R, t)$ den dazugehörigen Kernwellenfunktionen. Die elektronischen Wellenfunktionen sind orthonormal, d.h es gilt

$$\int_{-\infty}^{\infty} d^3\vec{r} \varphi_i \varphi_j = \delta_{ij}. \quad (\text{A.7})$$

Nach Einsetzen der Gesamtwellenfunktion in die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung, nach der Multiplikation mit φ_g und der vollständigen Integration über die Komponenten der Elektronenkoordinaten \vec{r} erhält man im Rahmen der Born-Oppenheimer-Näherung¹ die folgende Gleichung:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_g = \left(-\frac{1}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + V_g(R) \right) \phi_g + K \cos(\omega t) \phi_u. \quad (\text{A.8})$$

Analog erhält man durch Multiplikation mit φ_u anstatt mit φ_g :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_u = \left(-\frac{1}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + V_u(R) \right) \phi_u + K \cos(\omega t) \phi_g, \quad (\text{A.9})$$

mit K dem Dipolmatrixelement des $1s\sigma_g$ Zustandes mit dem $2p\sigma_u$ Zustand:

$$K = \int_{-\infty}^{\infty} d^3\vec{r} \varphi_g E_0 e \vec{r} \hat{e}_z \varphi_u = \int_{-\infty}^{\infty} d^3\vec{r} \varphi_u E_0 e \vec{r} \hat{e}_z \varphi_g \quad (\text{A.10})$$

und $V_g(R)$ und $V_u(R)$ als den Potentialkurven für die Kernbewegung, die sich aus der Lösung der Eigenwertgleichung für die elektronischen Wellenfunktionen φ_g und φ_u :

$$H_{el} \varphi_{g,u} = V_{g,u} \varphi_{g,u} \quad (\text{A.11})$$

ergibt. Die beiden gekoppelten Differentialgleichungen A.8 und A.9 lassen sich schreiben als:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \phi_g \\ \phi_u \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{1}{2\mu} \nabla_R^2 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2\mu} \nabla_R^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_g \\ \phi_u \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} V_g & K \cos(\omega t) \\ K \cos(\omega t) & V_u \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_g \\ \phi_u \end{pmatrix}. \quad (\text{A.12})$$

¹ $\nabla_R \varphi(R, \vec{r}) = 0$

Bei dem Hamiltonoperator handelt es sich um einen zeitlich periodischen Operator, daher läßt sich die dazugehörige Wellenfunktion nach dem Floquet-Theorem in einer Fourier-Reihe entwickeln [108, 109]:

$$\begin{pmatrix} \phi_g \\ \phi_u \end{pmatrix} = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \begin{pmatrix} \phi_{gm} \\ \phi_{um} \end{pmatrix} e^{-im\omega t - iEt}. \quad (\text{A.13})$$

Analog zum Photonenbild beschreibt die $\pm m$ -te harmonische Komponente der Gleichung A.13 ein Molekül, das m Photonen aus dem Lichtfeld absorbiert bzw. in das Lichtfeld emittiert. Durch Einsetzen von Gleichung A.13 in Gleichung A.12 erhält man:

$$\begin{aligned} \sum_m (m\omega + E) \begin{pmatrix} \phi_{gm} \\ \phi_{um} \end{pmatrix} e^{-i(m\omega + E)t} &= \sum_m \begin{pmatrix} -\frac{1}{2\mu} \nabla_R^2 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2\mu} \nabla_R^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_{gm} \\ \phi_{um} \end{pmatrix} e^{-i(m\omega + E)t} \\ &+ \sum_m \begin{pmatrix} V_g & 0 \\ 0 & V_u \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_{gm} \\ \phi_{um} \end{pmatrix} e^{-i(m\omega + E)t} \\ &+ \sum_m \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & K \\ K & 0 \end{pmatrix} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \begin{pmatrix} \phi_{gm} \\ \phi_{um} \end{pmatrix} e^{-i(m\omega + E)t}. \end{aligned}$$

Diese Gleichung läßt sich auch in Matrix-Form schreiben und man erhält:

$$E\phi = \tilde{T}\phi + (\tilde{V} - \tilde{M}) + \tilde{K}\phi \quad (\text{A.14})$$

mit

$$\phi = \begin{pmatrix} \vdots \\ \begin{pmatrix} \phi_{g1} \\ \phi_{u1} \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} \phi_{g0} \\ \phi_{u0} \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} \phi_{g-1} \\ \phi_{u-1} \end{pmatrix} \\ \vdots \end{pmatrix}, \quad (\text{A.15})$$

$$\tilde{T} = \begin{pmatrix} \ddots & & & & 0 \\ & \begin{pmatrix} \frac{\nabla_R^2}{2\mu} & 0 \\ 0 & \frac{\nabla_R^2}{2\mu} \end{pmatrix} & & & \\ & & \begin{pmatrix} \frac{\nabla_R^2}{2\mu} & 0 \\ 0 & \frac{\nabla_R^2}{2\mu} \end{pmatrix} & & \\ & & & \begin{pmatrix} \frac{\nabla_R^2}{2\mu} & 0 \\ 0 & \frac{\nabla_R^2}{2\mu} \end{pmatrix} & \\ 0 & & & & \ddots \end{pmatrix}, \quad (\text{A.16})$$

$$\tilde{V} = \begin{pmatrix} \ddots & & & & 0 \\ & \begin{pmatrix} V_g & 0 \\ 0 & V_u \end{pmatrix} & & & \\ & & \begin{pmatrix} V_g & 0 \\ 0 & V_u \end{pmatrix} & & \\ & & & \begin{pmatrix} V_g & 0 \\ 0 & V_u \end{pmatrix} & \\ 0 & & & & \ddots \end{pmatrix}, \quad (\text{A.17})$$

$$\tilde{M} = \begin{pmatrix} \ddots & & & & 0 \\ & \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} & & & \\ & & \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} & & \\ & & & \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} & \\ 0 & & & & \ddots \end{pmatrix} \quad (\text{A.18})$$

und (A.19)

$$\tilde{K} = 1/2 \begin{pmatrix} \ddots & & & & 0 \\ & \ddots & & & \\ & & 0 & & \\ & & \begin{pmatrix} 0 & K \\ K & 0 \end{pmatrix} & & \\ & & & 0 & \begin{pmatrix} 0 & K \\ K & 0 \end{pmatrix} \\ & & & \begin{pmatrix} 0 & K \\ K & 0 \end{pmatrix} & 0 & \ddots \\ 0 & & & & & \ddots \end{pmatrix}. \quad (\text{A.20})$$

Der Term \tilde{V} in Gleichung A.14 enthält die diabatischen Potentiale, die sich aus der Lösung der ungestörten Schrödinger-Gleichung ergeben. Die Differenz $\tilde{V} - \tilde{M}$ beschreibt die Energie der „mit Photonen“ bekleideten Zustände². Es handelt sich dabei um die um die Energie von $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ Photonen verschobenen diabatischen Potentiale V_g und V_u . Der Term \tilde{K} stellt die Kopplung der bekleideten Zustände via Dipolkopplung dar. Diese Kopplung tritt an den Kreuzungen der bekleideten Zustände für dipolerlaubte Übergänge auf.

Bei Gleichung A.14 handelt es sich um ein System von gekoppelten Differentialgleichungen. Durch eine unitäre Transformation U der Wellenfunktion läßt sich nun der Potentialanteil der Gleichung A.14 diagonalisieren

$$\phi = U\phi_{ad} \quad (\text{A.21})$$

und man erhält man für Gleichung A.14:

$$\tilde{E}\phi_{ad} = U^{-1}\tilde{T}U\phi_{ad} + U^{-1}(\tilde{V} - \tilde{M} + \tilde{K})U\phi_{ad}. \quad (\text{A.22})$$

Die Transformation ist so gewählt, daß die folgende Matrix für jedes R diagonal ist:

$$U^{-1}(\tilde{V} - \tilde{M} + \tilde{K})U = \tilde{D}(R). \quad (\text{A.23})$$

$$\tilde{D}(R) = \begin{pmatrix} \ddots & & & & & & 0 \\ & \begin{pmatrix} V_{ad,g1} & 0 \\ 0 & V_{ad,u1} \end{pmatrix} & & & & & \\ & & \begin{pmatrix} V_{ad,g0} & 0 \\ 0 & V_{ad,u0} \end{pmatrix} & & & & \\ & & & \begin{pmatrix} V_{ad,g-1} & 0 \\ 0 & V_{ad,u-1} \end{pmatrix} & & & \\ & & & & \ddots & & \\ 0 & & & & & & \end{pmatrix} \quad (\text{A.24})$$

Die nicht-adiabatische Kopplung über die kinetische Energie ist für kleine kinetische Energien der Kerne gering und kann daher vernachlässigt werden:

$$U^{-1}\tilde{T}U\phi_{ad} \approx \tilde{T}\phi_{ad} \quad (\text{A.25})$$

und man erhält damit:

$$\tilde{E}\phi_{ad} = \tilde{T}\phi_{ad} + \tilde{D}(R)\phi_{ad}. \quad (\text{A.26})$$

Die diagonalisierte Matrix $D(R)$ enthält die gesuchten adiabatischen Potentiale. Für numerische Rechnungen beschränkt man sich auf endlich dimensionale Matrizen und ersetzt die unendliche Summe in Gleichung A.13 durch eine endliche Summe von $m = -m_0$ bis m_0 (m_0 „Floquetblöcke“). In Abbildung A.1 sind als Beispiel die mit dem Floquet-Ansatz berechneten adiabatischen Potentiale für eine Lichtintensität von Null (a) und eine Lichtintensität von $I = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (b) gezeigt. Die ungestörten Potentialkurven

²im englischen Sprachgebrauch: dressed states

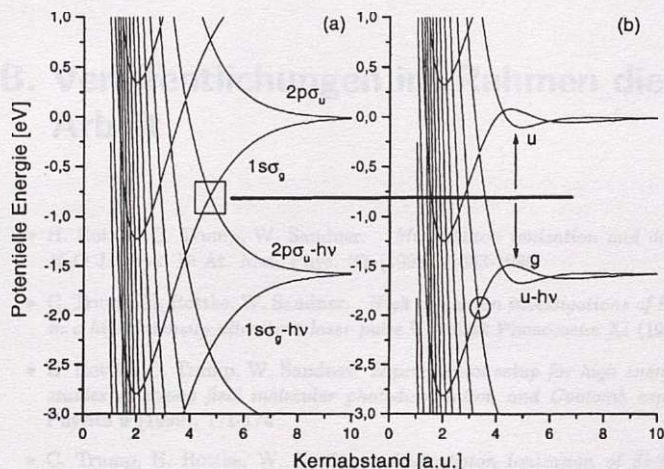


Abbildung A.1.: Mit dem Floquet-Ansatz berechneten adiabatische Potentiale in einem Lichtfeld der Wellenlänge $\lambda = 790 \text{ nm}$. (a) Für Intensität Null und (b) für $I = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$

$V_g(R)$ und $V_u(R)$ wurden aus [2] entnommen, die R-abhängigen Dipolmatrixelemente zwischen den elektronischen Zuständen $1s_g$ und $2p_u$ wurden von Ramaker et al. [110] übernommen. In dieser Rechnung werden 7 Floquet-Blöcke berücksichtigt. Da die Ausgangsbasis nur zwei elektronische Zustände des H_2^+ Moleküls beinhaltet, läßt sich das Potentialbild auf zwei Energieeigenwerte reduzieren, die in Abbildung A.1b mit g und u bezeichnet sind. Die übrigen Eigenwerte sind periodisch um eine Photonenenergie $\hbar\omega$ nach oben und unten verschoben. Man spricht daher von den mit Photonen bekleideten Zuständen. Der Schnittpunkt der Potentialkurven $1s_g$ und $2p_u$ in Abbildung A.1a (gekennzeichnet durch das Quadrat) wird im Lichtfeld (siehe Abbildung A.1b) aufgrund der Dipolkopplung zu einer vermiedenen Kreuzung in den adiabatischen Potentialen.

Die adiabatischen Potentialkurven können nicht mehr die gleiche Anzahl von Vibrationsniveaus binden wie im ungestörten Fall, dadurch kommt es zu einer Dissoziation von im ungestörten Fall gebunden Vibrationszuständen im durch die zwei Pfeile angedeuteten Bereich. Die vermiedene Kreuzung aufgrund der 3-Photonenkopplung der Zustände

A. Quantenmechanische Behandlung von H_2^+ in intensiven Lichtfeldern

$1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ ist bei der hier gezeigten Lichtintensität noch sehr klein (siehe Kreis in Abbildung A.1b).

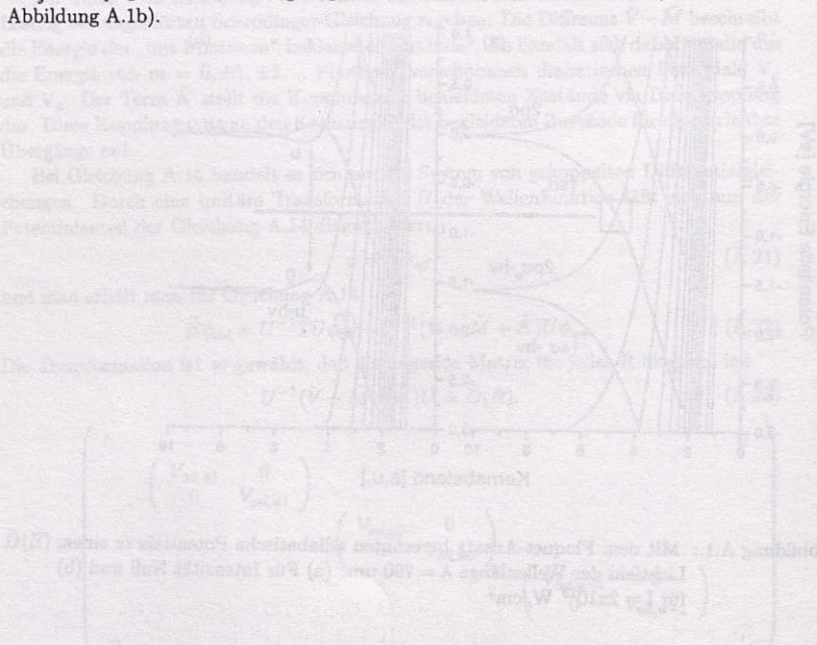


Abb. A.1: (a) Energielevels von H_2^+ in einem Laserfeld der Intensität $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$. (b) Energielevels von H_2^+ in einem Laserfeld der Intensität $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$. (c) Energielevels von H_2^+ in einem Laserfeld der Intensität $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

B. Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit

- H. Rottke, C. Trump, W. Sandner. *Multiphoton ionization and dissociation of H_2O* J. Phys. B: At. Mol. Phys. **31** (1998), 1083-1096
- C. Trump, H. Rottke, W. Sandner. *High resolution investigations of H_2^+ exploding in a high intensity ultrashort laser pulse* Ultrafast Phenomena XI (1998), 450-452
- H. Rottke, C. Trump, W. Sandner. *Experimental setup for high energy resolution studies of strong field molecular photodissociation and Coulomb explosion* Laser Physics **9** (1999), 171-174
- C. Trump, H. Rottke, W. Sandner. *Multiphoton ionization of dissociating D_2^+ molecules* Phys. Rev. A **59** (1999), 2858-2863
- C. Trump, H. Rottke, W. Sandner. *Strong field photoionization of vibrational ground state H_2^+ and D_2^+ molecules* Phys. Rev. A **60** (1999), 3924-3928
- R. Moshhammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann, W. Sandner. *Momentum distributions of Ne^{n+} ions created by an intense ultrashort laser pulse* Phys. Rev. Lett. **84** (2000), 447-450
- C. Trump, H. Rottke, M. Wittmann, G. Korn, W. Sandner, M. Lein, V. Engel. *Pulse width and isotope effects in femtosecond-strong-field dissociation of H_2^+* Phys. Rev. A, submitted

C. Lebenslauf

Christoph E. Trump

PERSÖNLICHE DATEN

Geburtsdatum:	24.10.1972
Geburtsort:	Würzburg
Staatsangehörigkeit:	deutsch
Familienstand:	ledig

SCHULAUSSILDUNG

1979-1983	Eichendorff-Grundschule Gerbrunn
1983-1992	Siebold-Gymnasium Würzburg

STUDIUM

WS 1992/1993 - SS 1995	Studium an der Julius-Maximilians-Universität Würzburg
10.1994	Vordiplom
07.1995-12.1996	Studium an der University of Texas at Austin (USA)
12.1996	Abschluss: Master of Arts (Physics) Thema der Master-Thesis: „Femtosecond Frequency Domain Interferometer for Probing Laser Induced Phase Transitions in Silicon“
2.1997	Beginn mit der Promotion bei Prof. Sandner an der Technischen Universität, Berlin und am Max-Born Institut, Berlin

D. Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Dr. Sandner für die interessante Themenstellung und die Möglichkeit, die vorliegende Arbeit im Bereich B des Max-Born Institutes anzufertigen.

Allen Mitarbeitern und Mitarbeiterinnen am Max-Born Institut, die mir während der vergangenen Jahre hilfreich zur Seite standen, möchte ich hiermit ebenfalls meinen Dank aussprechen. Weiter möchte ich mich bei Prof. Ullrich und seiner Gruppe für die freundliche Zusammenarbeit bedanken.

Mein besonderer Dank und Respekt gebührt meinem Betreuer Dr. Horst Rottke.

Literaturverzeichnis

- [1] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer, and K. C. Kulander. Precision Measurement of Strong Field Double Ionization of Helium. *Phys. Rev. Lett.*, 73:1227–1230, 1994.
- [2] T. E. Sharp. Potential-energy curves for molecular hydrogen and its ions. *Atomic Data*, 2:119, 1971.
- [3] J. E. Pollard, D. J. Trevor, Y. T. Lee, and D. A. Shirley. Rotational relaxation in supersonic beams of hydrogen by high resolution photoelectron spectroscopy. *J. Chem. Phys.*, 77(10):4818–4825, 1982.
- [4] M. Dammasch. *Priv. Mitteilung*. 2000.
- [5] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electric field. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 91:2008, 1986.
- [6] R. C. Weast, editor. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press Inc., 60th edition, 1980.
- [7] M. D. Perry, D. Pennington, B. C. Stuart, G. Tiethohl, J. A. Britten, C. Brown, S. Herman, B. Golick, M. Kartz, J. Miller, H. T. Powell, M. Vergino, and V. Yanovsky. Petawatt laser pulses. *Opt. Lett.*, 24(3):160–162, 1999.
- [8] A. Giusti-Suzor, F. H. Mies, L. F. DiMauro, E. Charron, and B. Yang. Dynamics of H_2^+ in intense laser fields. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 28:309–339, 1995.
- [9] K. Codling and L. J. Frasinski. Dissociative ionization of small molecules in intense laser fields. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 26:783–809, 1993.
- [10] G. S. Voronov and N. B. Delone. *Sov. Phys.-JETP*, 23:54, 1966.
- [11] P. Agostini, G. Barjot, J. F. Bonnal, G. Mainfray, c. Manus, and J. Morelle. Multiphoton ionization of hydrogen and rare gases. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, QE-4:667, 1968.

- [12] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42:1127–1130, 1979.
- [13] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic. Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 59:1092, 1987.
- [14] G. G. Paulus, W. Nicklich, X. Huale, P. Lambropoulos, and H. Walther. Plateau in Above Threshold Ionization Spectra. *Phys. Rev. Lett.*, 72:2851, 1994.
- [15] K. Burnett, V. C. Reed, and P. L. Knight. Atoms in ultra-intense laser fields. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 26:561–598, 1993.
- [16] H. Rottke, B. Wolff, M. Brickwedde, D. Feldmann, and K. H. Welge. Multiphoton ionization of atomic hydrogen in intense subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 64:404, 1990.
- [17] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Generation of Coherent Soft X Rays at 2.7 nm Using High Harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 16:2967–2970, 1997.
- [18] B. Yang, K. Schafer, B. Walker, K. Kulander, P. Agostini, and L. DiMauro. Intensity-dependent scattering rings in high order above-threshold ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71:3770–3773, 1993.
- [19] A. L'Huillier and P. Balcou. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 70:774–777, 1993.
- [20] K. S. Budil, P. Salières, A. L'Huillier, T. Ditmire, and M. D. Perry. Influence of ellipticity on harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 48:R3437, 1993.
- [21] N. H. Burnett, C. Kan, and P. B. Corkum. Ellipticity and polarization effects in harmonic generation in ionizing neon. *Phys. Rev. A*, 51:R3418, 1995.
- [22] R. R. Freeman and P. H. Bucksbaum. Investigations of above-threshold ionization using subpicosecond laser pulses. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 24:325–347, 1991.
- [23] L. F. DiMauro and P. Agostini. Ionization dynamics in strong laser fields. *Adv. in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 35:79–119, 1995.
- [24] M. Protopapas, C. H. Keitel, and P. L. Knight. Atomic physics with super-high intensity lasers. *Rep. Prog. Phys.*, 60:389–486, 1997.
- [25] H. Friedrich. *Theoretische Atomphysik*. Springer Verlag, 1990.

- [26] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, Inc, third edition, 1998.
- [27] J. Ludwig. *Molekularer Wasserstoff in intensiven Lichtfeldern*. Dissertation, Technische Universität Berlin, 1997.
- [28] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, 20(5):1307, 1965.
- [29] Haken and Wolf. *Molekülphysik und Quantenchemie*. Springer Verlag, 1994.
- [30] P. Kruit, J. Kimman, and M. v. Wiel. Absorption of additional photons in the multiphoton ionization continuum of xenon at 1064, 532 and 440 nm. *J. Phys B: At. Mol. Phys*, 14:L597-L602, 1981.
- [31] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini, and M. Clement. Multiphoton above-threshold ionisation of xenon at 0.53 and 1.06 μm . *J. Phys. B*, 15:1353, 1982.
- [32] L. A. Lompré, A. L'Huillier, G. Mainfray, and C. Manus. Laser-intensity effects in the energy distributions of electrons produced in the multiphoton ionization of rare gases. *J. Opt. Soc. Am B*, 2:1906-1912, 1985.
- [33] R. R. Freeman, T. J. McIlrath, P. H. Bucksbaum, and M. Bashkansky. Ponderomotive effects on angular distributions of photoelectrons. *Phys. Rev. Lett.*, 57:3156, 1986.
- [34] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, and K. C. Kulander. Observation of Nonsequential Double Ionization of Helium with Optical Tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 69:2642-2645, 1992.
- [35] B. Walker, E. Mevel, B. Yang, P. Breger, J. P. Chambaret, A. Antonetti, L. F. DiMauro, and P. Agostini. Double Ionization in the perturbative and tunneling regime. *Phys. Rev. A*, 48:R894-R897, 1993.
- [36] K. Kondo, A. Sagisaka, T. Tamida, Y. Nabekawa, and S. Watanabe. Wavelength dependence of nonsequential double ionization in He. *Phys. Rev. A*, 48:R25431-R2533, 1993.
- [37] S. Laroche, A. Talebpour, and S. L. Chin. Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field. *J. Phys. B*, 31:1201-1214, 1998.
- [38] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, and K. C. Kulander. Polarization dependence of tunneling ionization of helium and neon by 120-fs pulses at 614 nm. *Phys. Rev. A*, 49(3):2174-2177, 1994.

- [39] U. Eichmann, M. Dörr, H. Maeda, W. Becker, and W. Sandner. Collective multi-electron tunneling in strong laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 84:3550–3553, 2000.
- [40] S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, and J. H. Eberly. Tunneling Ionization of Noble Gases in High-Intensity Laser Field. *Phys. Rev. Lett.*, 63:2212–2214, 1989.
- [41] H. Maeda, M. Dammasch, U. Eichmann, and W. Sandner. . *Phys. Rev. A*, to be published, 2000.
- [42] P. B. Corkum. Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71:1994–1997, 1993.
- [43] B. Walker, B. Sheehy, K. C. Kulander, and L. F. DiMauro. Elastic Rescattering in the Strong Field Tunneling Limit. *Phys. Rev. Lett.*, 77:5031–5034, 1996.
- [44] M. Y. Ivanov. private communication.
- [45] R. Wehlitz, F. Heiser, O. Hemmers, B. Langer, A. Menzel, and U. Becker. Electron-Energy and -Angular Distributions in the Double Photoionization of Helium. *Phys. Rev. Lett.*, 67:3764–3767, 1991.
- [46] A. Becker and F. H. M. Faisal. Interplay of electron correlation and intense field dynamics in the double ionization of helium. *Phys. Rev. A*, 59:R1742–R1745, 1999.
- [47] A. Becker and F. H. M. Faisal. Production of high-charge states of Xe in a femto-second laser pulse. *Phys. Rev. A*, 59:R3182–R3185, 1999.
- [48] A. Becker and F. H. M. Faisal. S-matrix analysis of ionization yields of noble gas atoms at the focus of Ti:sapphire laser pulses. *J. Phys. B*, 32:L335–L343, 1999.
- [49] K. T. Taylor, J. S. Parker, D. Dundas, E. Smyth, and S. Vivirito. Laser-Driven Helium in Full Dimensionality. *Laser Physics*, 9:98–104, 1999.
- [50] J. S. Parker, E. Smyth, and K. T. Taylor. Intense-field multiphoton ionization of helium. *J. Phys. B*, 31:L571–L578, 1998.
- [51] D. Dundas, K. T. Taylor, J. S. Parker, and E. Smyth. Intense-field multiphoton ionization of helium. *J. Phys. B*, 32:L231–L238, 1999.
- [52] J. B. Watson, A. Sampera, D. G. Lappas, P. L. Knight, and K. Burnett. Nonsequential Double Ionization of Helium. *Phys. Rev. Lett.*, 78:1884–1887, 1997.
- [53] E. Charron, A. Giusti-Suzor, and F. H. Mies. Fragment angular distribution in one- and two-color photodissociation by strong laser fields. *Phys. Rev. A*, 49:R641–R644, 1994.

- [54] A. H. Zewail. *Femtochemistry : Ultrafast Dynamics of the Chemical Bond*, volume 1-3. World Scientific Pub Co, 1994.
- [55] C. Wunderlich, E. Kobler, H. Figger, , and T. W. Hnsch. Light-Induced Molecular Potentials. *Phys. Rev. Lett.*, 24:2333-2336, 1997.
- [56] A. D. Bandrauk, editor. *Molecules in Laser Fields*. Marcel Dekker, New York, 1994.
- [57] A. Giusti-Suzor and F. H. Mies. Vibrational Trapping and Suppression of Dissociation in Intense Laser Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 68:3869, 1992.
- [58] S. W. Allendorf and A. Szöke. High-intensity multiphoton ionization of H_2 . *Phys. Rev. A*, 44:518-534, 1991.
- [59] J. Ludwig, H. Rottke, and W. Sandner. Dissociation of H_2^+ and D_2^+ in an intense laser field. *Phys. Rev. A*, 54, 1996.
- [60] M. R. Thompson, M. K. Thomas, P. F. Taday, J. H. Posthumus, A. J. Langley, L. J. Frasinski, and K. Codling. One and two-colour studies of the dissociative ionization and Coulomb explosion of H_2 with intense Ti:sapphire laser pulses. *J. Phys. B*, 30(24):5755-5772, 1997.
- [61] F. A. Ilkov, T. D. G. Walsh, S. Turgeon, and S. L. Chin. Dissociative tunnel ionization of H_2 in an intense mid-ir laser field. *Phys. Rev. A*, 51:R2695-R2698, 1995.
- [62] Y. L. Shao, D. J. Fraser, M. H. R. Hutchinson, J. Larsson, J. P. Marangos, and J. W. G. Tisch. Ionization and Dissociation of H_2 with intense and ultra-short laser pulses at 780 nm and 390 nm. *Phys. Rev. Lett.*, 71:1994-1997, 1993.
- [63] P. H. Bucksbaum, A. Zavriyev, H. G. Muller, and D. W. Schumacher. Softening of the H_2^+ Molecular Bond in Intense Laser Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 64:1883-1886, 1990.
- [64] A. Zavriyev, P. H. Bucksbaum, H. G. Muller, and D. W. Schumacher. Ionization and dissociation of H_2 in intense laser fields at 1.064 μm , 532 nm, and 355 nm. *Phys. Rev. A*, 42(9):5500, 1990.
- [65] B. Yang, M. Saeed, L. F. DiMauro, A. Zavriyev, and P. H. Bucksbaum. High-resolution multiphoton ionization and dissociation of H_2 and D_2 molecules in intense laser fields. *Phys. Rev. A*, 44(3):R1458, August 1991.
- [66] B. Yang and L. F. DiMauro. Strong-field dissociation dynamics. *Laser Physics*, 3(2):389, 1993.

- [67] H. Rottke, J. Ludwig, and W. Sandner. H_2 and D_2 in intense sub-psec laser pulses: photoelectron spectroscopy at 1053 nm and 527 nm. *Phys. Rev. A*, 54(3):2224, 1996.
- [68] G. N. Gibson, M. Li, C. Guo, and J. Neira. Strong-Field Dissociation and Ionization of H_2^+ Using Ultrashort Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 79:2022–2025, 1997.
- [69] A. Giusti-Suzor, X. He, O. Atabek, and F. H. Mies. Above-Threshold Dissociation of H_2^+ in Intense Laser Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 64:515–518, 1990.
- [70] C. Trump, H. Rottke, and W. Sandner. Strong-field photoionization of vibrational ground-state H_2^+ and D_2^+ molecules. *Phys. Rev. A*, 60:3924–3928, 1999.
- [71] A. Zavriyev, P. H. Bucksbaum, J. Squier, and F. Salane. Light-induced vibrational structure in H_2^+ and D_2^+ in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 70(8):1077, 1993.
- [72] T. Seideman, M. Y. Ivanov, and P. B. Corkum. Role of electron localization in intense-field molecular ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 75(15):2819, October 1995.
- [73] J. H. Posthumus, A. J. Giles, M. R. Thompson, W. Shaikh, A. J. Langley, L. J. Frasinski, and K. Codling. The dissociation dynamics of diatomic molecules in intense laser fields. *J. Phys. B*, 29:L525–L531, 1996.
- [74] T. Zuo and A. D. Brandrauk. Charge-resonant-enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers. *Phys. Rev. A*, 52(4):R2511, October 1995.
- [75] T. D. G. Walsh, F. A. Ilkov, and S. L. Chin. The dynamical behaviour of H_2 and D_2 in a strong femtosecond, titanium:sapphire laser field. *J. Phys. B*, 30:2167–2175, 1997.
- [76] J. H. Posthumus, J. Plumridge, K. Codling, L. J. Frasinski, A. J. Langley, and P. F. Taday. Alignment of Molecules on a Vibrational Timescale. *Laser Physics*, 9:163–170, 1999.
- [77] L. J. Frasinski, J. H. Posthumus, J. Plumridge, K. Codling, P. F. Taday, and A. J. Langley. Manipulation of Bond Hardening in H_2^+ by Chirping of Intense Femtosecond Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 83:3625–3628, 1999.
- [78] D. R. Miller. *Atomic and Molecular Beam Methods*. Oxford University Press, 1988.
- [79] J. Ludwig, H. Rottke, and W. Sandner. Dissociation of H_2^+ and D_2^+ in an intense laser field. *Phys. Rev. Lett.*, 56:2168–2181, 1997.

- [80] H. Rottke, C. Trump, and W. Sandner. Experimental setup for high energy resolution studies of strong field molecular photodissociation and Coulomb explosion. *Laser Phys.*, 9:171–174, 1999.
- [81] M. P. Kalashnikov, P. V. Nickles, M. Schnuerer, I. Will, and W. Sandner. Multi-terawatt hybrid Ti:Sa-Nd:glass dual-beam laser: a novel XUV laser driver. *Opt. Com.*, 133(1-6):216–220, 1997.
- [82] S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh, and A. S. Chirkin. *Optics of Femtosecond Laser Pulses*. American Institute of Physics, 1992.
- [83] J.-C. M. Diels et. al. Appl. opt. *Circular of the National Bureau of Standards 467; Washington D.C.*, 24(9):1270–1282, 1985.
- [84] J. H. Posthumus, L. J. Frasinski, A. J. Giles, and K. Codling. Dissociative ionization of molecules in intense laser fields: a method of predicting ion kinetic energies and appearance intensities. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 28:L349–353, 1995.
- [85] G. H. Dunn. Franck-Condon Factors for the Ionization of H_2 and D_2 . *J. Chem. Phys.*, 44:2592–2594, 1966.
- [86] G. Herzberg. *Molecular spectra and molecular structure I. Spectra of diatomic molecules*. D. van Nostrand Company, Inc., Princeton, New Jersey, 1st edition, 1950.
- [87] T. D. G. Walsh, F. A. Ilkov, S. L. Chin, F. Châteauneuf, T. T. Nguyen-Dang, S. Chelkowski, A. D. Bandrauk, and O. Atabek. Laser-induced processes during the Coulomb explosion of H_2 in a Ti-sapphire laser pulse. *Phys. Rev. A*, 58:3922–3933, 1998.
- [88] J. Borkowski. *Aufbau eines Femtosekunden-Lasers mit Anwendungen zur Multiphotonen-Ionisation von Edelgasen*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1996.
- [89] C. Trump, H. Rottke, M. Wittmann, G. Korn, W. Sandner, M. Lein, and V. Engel. Pulse-width and isotope effects in femtosecond-strong-field dissociation of H_2^+ and D_2^+ . *Phys. Rev. A*, submitted, 2000.
- [90] B. Friedrich and D. Herschbach. Alignment and trapping of molecules in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 74(23):4623, June 1995.
- [91] M. Brewczyk, K. Rzaewski, and C. W. Clark. Multielectron Dissociative Ionization of Molecules by Intense Laser Radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 78:191–194, 1997.
- [92] V. R. Bhardwaj, K. Vijayalakshmi, and D. Mathur. Spatial alignment of gas-phase polyatomic molecules by an intense laser field. *Phys. Rev. A*, 56:2455, 1997.

- [93] D. T. Strickland, Y. Beaudoin, P. Dietrich, and P. B. Corkum. Optical studies of inertially confined molecular iodine ions. *Phys. Rev. Lett.*, 68:2755–2758, 1992.
- [94] L. J. Frasinski, L. J. Frasinski, K. Codling, P. Hatherly, J. Barr, I. N. Ross, and W. T. Toner. Femtosecond dynamics of multielectron dissociative ionization by use of a picosecond laser. *Phys. Rev. Lett.*, 58:2424–2427, 1987.
- [95] K. Boyer, T. S. Luk, J. C. Solem, and C. K. Rhodes. Kinetic energy distributions of ionic fragments produced by subpicosecond multiphoton ionization of N_2 . *Phys. Rev. A*, 39:1186, 1989.
- [96] D. Normand, L. A. Lompré, and C. Cornaggia. Laser-induced molecular alignment probed by a double-pulse experiment. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 25:L497–L503, 1992.
- [97] P. Dietrich, D. T. Strickland, M. Laberge, and P. B. Corkum. Molecular reorientation during dissociative multiphoton ionization. *Phys. Rev. A*, 47:2305, 1993.
- [98] J. H. Posthumus, A. J. Giles, M. R. Thompson, and K. Codling. Field ionization, Coulomb explosion of diatomic molecules in intense laser fields. *J. Phys. B*, 29:5811–5829, 1996.
- [99] J. H. Posthumus, J. Plumridge, M. K. Thomas, K. Codling, L. J. Frasinski, A. J. Langley, and P. F. Taday. Dynamic and geometric laser-induced alignment of molecules in intense laser fields. *J. Phys. B*, 31:L553–L562, 1998.
- [100] A. Talebpour, S. Larochelle, and S. L. Chin. Suppressed tunneling ionization of D_2 molecule in an intense Ti:sapphire laser pulse. *J. Phys. B*, 31:L49–L58, 1998.
- [101] A. D. Bandrauk and J. Ruel. Charge-resonance-enhanced ionization of molecular ions in intense laser pulses: Geometric and orientation effects. *Phys. Rev. A*, 59:2153–2162, 1999.
- [102] S. Chelkowski, P. B. Corkum, and A. D. Bandrauk. Femtosecond Coulomb Explosion Imaging of Vibrational Wave Functions. *Phys. Rev. Lett.*, 82:3416–3419, 1999.
- [103] H. Stapelfeldt, E. Constant, H. Sakai, and P. B. Corkum. Time-resolved Coulomb explosion imaging: A method to measure structure and dynamics of molecular nuclear wave packets. *Phys. Rev. A*, 58:426–433, 1998.
- [104] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Lalöe. *Quantenmechanik, Teil 1*. Walter de Gruyter & Co, 1997.

- [105] A. L'Huillier, L. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at $0.53\text{ }\mu\text{m}$. *Phys. Rev. A*, 27:2503–2599, 1983.
- [106] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking. A 4π recoil-ion electron momentum analyzer: a high resolution “microscope” for the investigation of the dynamics of atomic, molecular and nuclear reactions. *Nucl. Instr. B*, 108:425–445, 1996.
- [107] N. B. Delone and V. P. Krainov. Energy and angular electron spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 8:1207–1211, 1991.
- [108] S. I. Chu. Semiclassical floquet theories. *Adv. in At. and Mol. Phys.*, 21:752, 1985.
- [109] S. I. Chu. Generalized floquet theoretical approaches to intense-field multiphoton and nonlinear optical processes. *Adv. in Chem. Phys.*, LXXIII:739.
- [110] D. E. Ramaker and J. M. Peek. Dipole Strength Involving the Lowest Twenty Electronic States of H_2^+ . *Atomic Data*, 5:167, 1973.